



**HAL**  
open science

# Mécanismes d'écoulement et forme des dépôts dans l'impression 3D en béton

Anatole Geffrault

► **To cite this version:**

Anatole Geffrault. Mécanismes d'écoulement et forme des dépôts dans l'impression 3D en béton. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Gustave Eiffel, 2022. Français. NNT : 2022UEFL2079 . tel-04212309

**HAL Id: tel-04212309**

**<https://theses.hal.science/tel-04212309>**

Submitted on 20 Sep 2023

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

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



Thèse de doctorat de l'Université Gustave Eiffel

Présentée le 05/12/2022 par

**Anatole Geffrault**

## Mécanismes d'écoulement et forme des dépôts dans l'impression 3D en béton

### Jury

Rapporteur : Arnaud Perrot

Rapporteur : Rudy Valette

Examinatrice : Catherine Barentin

Examinatrice : Jalila Boujlel

Examineur : Nicolas Ducoulombier

Examineur : Nicolas Roussel

Co-directrice de thèse : Hela Bessaies-Bey

Directeur de thèse : Philippe Coussot



# Résumé

Dans le domaine de la construction, l'impression 3D de béton peut être utilisée pour construire des structures aux formes complexes, sans coffrage, et avec une quantité de matière réduite par rapport aux techniques traditionnelles. La technique d'impression 3D classique consiste à extruder puis à déposer un filament de béton sur la couche précédente. Pendant l'étape de dépôt, des instabilités peuvent apparaître, affaiblissant l'ensemble de la structure 3D.

Nous avons étudié des instabilités de dépôts linéaires avec un dispositif développé au laboratoire, qui permet de contrôler de manière indépendante la vitesse de sortie du filament et la vitesse de translation de la buse d'impression. Ces expériences contrôlées ont été effectuées sur plusieurs fluides à seuil simples dont le comportement a été bien caractérisé et considéré comme modèle pour le béton. Les paramètres d'impression ont été changés - vitesse de sortie, vitesse de translation, hauteur, diamètre de buse et contrainte seuil - et nous avons observé différents motifs : ligne discontinue, ligne droite, méandres, boucles alternées et boucles translitées. Nous avons ensuite démontré que deux paramètres adimensionnels décrivent complètement les conditions d'apparition des motifs :  $V^*$  le rapport de la vitesse de translation sur la vitesse de sortie, et  $H^*$  le rapport de la hauteur sur le diamètre de la buse. Nous avons en plus fait des analyses théoriques expliquant la transition entre les motifs, ce qui a complété notre compréhension de l'impact des paramètres d'impression sur les formes et les instabilités des dépôts.

Nous avons aussi développé des méthodes d'analyses d'images, permettant une étude détaillée de la rupture gravitaire d'un filament de fluide à seuil. Nous avons démontré que l'analyse de cette rupture permet de faire de la rhéométrie en élongation. De cette analyse, nous avons obtenu des courbes d'écoulement élongationnelles de fluides à seuil simples, et nous avons proposé un test simple pour obtenir le seuil par la mesure de la masse d'un extrudat.

Ce travail permet de comprendre comment un filament se dépose dans l'impression

---

3D pour la construction, et aussi pour tout autre domaine utilisant l'impression 3D par extrusion. Il pourra être utilisé pour éviter l'apparition d'instabilités dans le procédé de dépôt, et aussi pour penser de nouvelles stratégies d'impression qui tireraient profit des motifs.

# Abstract

In the construction field, 3D concrete printing can be used to build structures that have complex shapes, without formwork and with a smaller amount of material than conventional methods. To do so, the usual technique consists of extruding then depositing a concrete filament on the previous layer. During the deposition step, some instabilities may appear, inducing some weaknesses in the 3D structure.

We studied instabilities of linear deposits with a setup developed inside the laboratory that allows for an independent control of the exit speed of the filament and the translation speed of the nozzle. These controlled experiments were carried out on various simple yield stress fluids. Their behavior was well characterized and was considered as model for the concrete. The printing parameters were changed – exit speed, translation speed, height, nozzle diameter and yield stress – and we observed various deposition patterns : discontinuous line, straight line, meanders, alternated coils and translated coils. We then demonstrated that two non dimensional parameters fully describe the conditions of appearance of the patterns :  $V^*$  the ratio of translation speed over exit speed, and  $H^*$  the ratio of height over nozzle diameter. We concluded with theoretical explanations for the transition between patterns, which completed our understanding of the impact of the printing parameters on the shapes and instabilities of deposits

We also developed image analyses that allowed us for a detailed study of the break-up of a filament of yield stress fluid due to gravity. We demonstrated that the analysis of the break-up makes it possible to perform elongational rheometry. From that, we obtained elongational flow curves of simple yield stress fluids and we proposed a simple test to measure a yield stress by weighing a detached drop of filament.

This work provides an understanding on how a filament deposits itself in 3D printing for the construction, and also for any other field using 3D printing by extrusion. It could be used to avoid the appearance of instabilities in the deposition process, but also to think of new printing strategies that would use the patterns.

# Remerciements

J'ai passé un peu plus de trois excellentes années au laboratoire Navier, avec une équipe fantastique, que j'aimerais remercier. Pour commencer par le commencement, je remercie Nicolas Ducoulombier qui a pensé à moi pour cette thèse. Grâce à son aide, j'ai démarré cette aventure en retrouvant, avec beaucoup de plaisir, Hela Bessaies-Bey et Nicolas Roussel, qui m'ont suivi et aidé durant ces années. Et j'ai eu la chance d'avoir le prof, Philippe, comme directeur, et ça, c'est la classe. La classe parce que Philippe est valorisant, toujours à l'écoute, et incroyablement présent, et que c'est génial d'avoir ce support en thèse. En plus d'être très fort. Donc merci beaucoup à vous trois !

Pour continuer de manière chronologique, je voudrais remercier celles et ceux qui m'ont accueilli dans le labo, à commencer par l'équipe des permanent.e.s, pour les discussions et votre aide, pour m'avoir appris à faire une magnifique mayonnaise ou avoir travaillé sur mes motifs pendant vos vacances au ski. Merci aussi pour l'expérience d'enseignement que j'ai beaucoup aimée. Un grand merci à l'équipe technique, vous avez clairement été indispensables, en plus d'être tous très sympas et disponibles. Et merci beaucoup à l'équipe administrative, en particulier Virginia et Ninon.

Il y a aussi les ancien.ne.s doctorant.e.s et post-docs qui m'ont introduit à la vie du labo et avec qui j'ai passé de supers moments. D'abord l'équipe du grand bureau, Janine, Badreddine, Yasemin, Julia, Florian. Puis mon frère de bureaux Wenqiang (j'espère te revoir bientôt en Chine!), avec notre squatteur préféré Robert (on pourrait presque rajouter Julia ici). Et puis les ami.e.s du plot C, Leila, Viera, Florian (encore!?) et Elie, notre formateur officiel en rhéologie et en course.

Puis viennent ceux qui ont démarré la thèse en même temps que moi, aka les enfants Coussot. Elisa, un an de pauses clopes plaisir, auxquelles on ajoute un an d'appels Paris-Boston et on saupoudre d'un an de retour au labo pour des pauses sans clopes et toujours un grand plaisir. Et Hicham, je sais que tu trouves qu'ils ont placé Paris trop au nord, mais ton année au labo était quand-même une vraiment bonne période pour

---

moi.

Très vite, on a été rejoint par tout un groupe de doctorant.e.s et post-docs qui ont fait que j'ai énormément apprécié toutes mes journées au labo, grâce notamment aux petites visites en salle de manip. Merci Antoine, l'héritier, pour ta douceur, ta sollicitude et ces supers discussions ; Nabil, l'ancien, de toujours nous surprendre et nous faire rire ; Margaux, c'est la joie, la fête à chaque fois que je traverse le labo pour te trouver ; Franck, la force tranquille, le meilleur des capitaines ; Kassem, toujours partant pour la petite leçon d'échec ; Ahmad, rheology bro ; Yuliang, trop fort dans tous les sports et la nouvelle pépite de la recherche ; Paul, adopté dès le premier jour de stage ; Ali le smile ; Nicolo ; Bob ; Xiaohan (sorry I could not try all the food you brang) ; Laura (good luck with your subject) ; Luoyi, what a nice discovery ! ; Valentine, c'était trop court ! Et puis merci à celles et ceux qui ont été de passage. Imane et Jovialy, vous êtes supers, j'ai adoré travailler avec vous ; Maxime, Léonie c'étaient de très bons moments. J'aurai aussi de très bons souvenirs des sessions de course et de foot, et de tous les gens avec qui j'ai partagé ces bons moments.

Merci enfin au jury qui a pris le temps de lire et étudier ma thèse, merci Arnaud et Rudy pour votre travail et votre pertinence en tant que rapporteurs, et merci Catherine, Jalila et Nicolas (Ducoulombier, de retour !). Et merci encore Hela, Nicolas (Roussel) et Philippe.

Et merci aux ami.e.s, à la famille, à Hirvin et Camille qui m'ont aidé à m'aérer l'esprit pendant ce temps.

Merci beaucoup !

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>8</b>
<b>1 Etat de l’art</b>	<b>13</b>
1.1 Impression 3D pour la construction . . . . .	13
1.1.1 Principe . . . . .	13
1.1.2 Forme du dépôt par différentes stratégies d’impression . . . . .	14
1.2 Flambement, enroulement et motifs de dépôts . . . . .	16
1.2.1 Dynamique complète par les équations de mouvement . . . . .	17
1.2.2 Éclairages supplémentaires . . . . .	21
1.2.3 Modes de flambement . . . . .	23
1.3 Caractérisations des fluides à seuil . . . . .	26
1.3.1 Définitions . . . . .	26
1.3.2 Mesure des propriétés de cisaillement . . . . .	27
1.3.3 Ecoulements de l’impression 3D . . . . .	28
1.3.4 Modélisation et mesure des propriétés d’élongation . . . . .	30
<b>2 Matériel et méthodes</b>	<b>40</b>
2.1 Préparation des matériaux . . . . .	40
2.2 Rhéométrie en cisaillement du carbopol et de l’émulsion . . . . .	43
2.2.1 Gel de carbopol . . . . .	43
2.2.2 Émulsion . . . . .	46
2.3 Rhéométrie en cisaillement du kaolin . . . . .	47
2.3.1 Effets de bord . . . . .	47
2.3.2 Courbes d’écoulement du kaolin . . . . .	51
2.3.3 Comportement solide . . . . .	54
2.3.4 Élasticité, plasticité, viscosité du kaolin . . . . .	56
2.4 Rhéométrie en cisaillement du ciment . . . . .	58
2.4.1 Courbes d’écoulement . . . . .	58
2.4.2 Thixotropie du ciment . . . . .	62

TABLE DES MATIÈRES

---

2.5	Machines . . . . .	63
<b>3</b>	<b>Loi de comportement en élongation</b>	<b>69</b>
3.1	Observations générales . . . . .	69
3.1.1	Modélisation du problème de goutte . . . . .	70
3.1.2	Profils . . . . .	74
3.1.3	Théorie . . . . .	78
3.2	Courbes d'écoulement élongationnelles . . . . .	84
3.2.1	Analyse du cisaillement . . . . .	85
3.2.2	Courbes d'écoulement en élongation du kaolin . . . . .	91
3.2.3	Courbes d'écoulement en élongation de l'émulsion et du gel de carbopol . . . . .	94
3.3	Rhéométrie extensionnelle du domaine solide . . . . .	96
3.4	Courbes d'écoulement en élongation du ciment . . . . .	98
3.5	Conclusion sur les courbes d'écoulement en élongation . . . . .	99
<b>4</b>	<b>Mesure du seuil en élongation par un test simple</b>	<b>102</b>
4.1	Évolution du point de pincement . . . . .	102
4.2	Impact de la vitesse de sortie . . . . .	110
4.3	Détermination du seuil par pesée de gouttes . . . . .	116
4.4	Détermination du seuil en élongation du ciment . . . . .	121
4.5	Conclusions sur la technique et conséquences pratiques . . . . .	125
<b>5</b>	<b>Motifs de dépôts</b>	<b>127</b>
5.1	Observations générales . . . . .	127
5.2	Construction d'une cartographie et répétabilité . . . . .	131
5.3	Variations en fonction des paramètres de concentration, vitesse et diamètre	133
5.3.1	Influence de la concentration en kaolin . . . . .	133
5.3.2	Influence de la vitesse . . . . .	135
5.3.3	Influence du diamètre d'extrusion . . . . .	139
5.3.4	Bilan (a)dimensionnel . . . . .	141
5.4	Analyse théorique . . . . .	143
5.4.1	Flambement . . . . .	143
5.4.2	Frontière lignes continues/discontinues à partir des déformations d'une goutte . . . . .	145
5.4.3	Cartographie avec les frontières théoriques . . . . .	148
5.5	Motifs du ciment . . . . .	149
	<b>Conclusion</b>	<b>151</b>

## TABLE DES MATIÈRES

---

<b>Références</b>	<b>156</b>
<b>A Calibration de l'imprimante Wasp 3D</b>	<b>163</b>
<b>B Codes pour l'analyse des écoulements d'extrusion</b>	<b>168</b>
<b>C Flambement</b>	<b>173</b>
C.1 Traitement théorique . . . . .	173
C.2 Résultats expérimentaux . . . . .	179
<b>D Données de cartographies des dépôts complémentaires</b>	<b>184</b>

# Introduction

Le domaine de la construction a récemment commencé à utiliser la technologie d'impression 3D dans le but de construire des structures tridimensionnelles complexes à grande échelle. Pour cela, la construction peut s'inspirer de techniques qui existent déjà dans d'autres domaines, comme l'impression 3D de plastique qui est largement répandue, notamment chez les particulier.e.s, qui peuvent gagner en autonomie et en personnalisation en possédant leur outil de production directement à la maison. L'impression 3D est aussi appliquée dans le domaine de la métallurgie, qui met en jeu, comme la construction, des échelles grandes, ou encore dans le domaine médical, qui demande des échelles beaucoup plus fines, pour fabriquer des objets biocompatibles par exemple. Pour mettre en oeuvre une technologie d'impression pour la construction, il faut qu'elle soit adaptée aux matériaux de la construction.

Les matériaux principalement utilisés pour la construction sont le bois, le béton et la terre. Le bois a naturellement une structure solide remarquable, et peut déjà prendre des formes complexes par des découpes et des assemblages. Le béton et la terre, en revanche, sont des matériaux plus ou moins pâteux, qui ne sont pas "prêts à l'emploi" comme le bois. Il nécessitent d'être mis en forme, ce qui se fait classiquement en utilisant des moules. Selon leur consistance et les propriétés souhaitées, les types de moules peuvent varier. On peut par exemple couler du ciment dans un volume bien délimité, ou fabriquer des briques de terre crue en la comprimant. Ces utilisations des moules limitent les formes. De nouvelles techniques d'impression 3D peuvent permettre de dépasser ces limitations.

Les technologies d'impression 3D développées pour la construction consistent le plus souvent à déposer successivement des couches de matériau les unes sur les autres jusqu'à atteindre la hauteur finale souhaitée. Dans cette thèse, nous nous concentrons sur la technique d'impression 3D la plus utilisée, dans laquelle une buse, ou tête d'impression, vient extruder un filament qui est alors déposé sur une surface. La buse peut se déplacer dans les 3 dimensions pour imprimer la forme souhaitée. Les bétons et les terres utilisés habituellement sont naturellement de bons candidats pour cette technique. Ils ont déjà

une consistance pâteuse qui fait qu'une couche peut être mise en forme et être assez solide pour ne pas trop se déformer sous son propre poids.

Les matériaux utilisés ont comme base des particules de ciment (pour les bétons) ou d'argile (pour la terre crue), et sont donc des suspensions de particules avec une consistance plus ou moins pâteuse. D'autres matériaux, comme des gels ou des émulsions, ont aussi une consistance similaire. Ce comportement est traduit en termes physiques par le fait que ce groupe de matériaux a un comportement qui peut être parfois solide, c'est-à-dire qu'ils sont capables de maintenir leur forme si la force qui s'applique sur eux est assez faible, ou bien un comportement liquide, c'est-à-dire qu'ils s'écoulent si la force qui s'applique sur eux est assez grande. Plus précisément, on appelle ces matériaux fluides à seuil. Les fluides à seuil peuvent avoir des microstructures différentes, puisqu'ils peuvent être des suspensions de particules (comme des particules de ciment dans de l'eau), des gels (par exemple de polymères qui s'enchevêtrent dans l'eau) ou des émulsions (par exemple une mayonnaise, dans laquelle le coincement de microgouttes d'huile lui donne sa tenue). Mais ils ont en commun de tous avoir une structure coincée qui leur confère un seuil. Si on leur applique une contrainte supérieure à la contrainte seuil, cette structure coincée est cassée et le fluide à seuil commence à s'écouler.

La suspension de ciment est un peu plus complexe car sa structure évolue avec le temps, à la différence de l'émulsion, du gel et du kaolin, qu'on appelle par opposition des fluides à seuil "simples". Pour introduire la complexité étape par étape dans nos études, nous proposons d'utiliser le kaolin comme un fluide à seuil modèle du ciment dans le sens où le kaolin a un seuil, comme le ciment ; et nous pouvons contrôler le comportement du kaolin en faisant varier sa concentration. Les mesures sur le kaolin se déroulent en général dans de bonnes conditions.

En pratique, au cours d'une impression 3D, des instabilités, qu'on souhaite éviter, peuvent se développer au cours d'un dépôt. Elles peuvent avoir lieu par exemple au moment de l'impression d'un angle pour lequel le rayon de courbure est faible, ou bien peuvent faire apparaître des motifs (figure 1). Comme il n'y a pas (ou peu) de moyens pour prédire la forme du dépôt d'un matériau en fonction des paramètres d'impression choisis, la solution pour éviter ces instabilités est généralement de tester et de faire des ajustements de paramètres si nécessaire. A travers cette thèse, notre but est de fournir ces moyens de prédiction. Pour cela, nous souhaitons comprendre l'origine physique des instabilités de dépôts.

Avec des fluides à seuil simples modèles, nous réalisons des expériences permettant d'étudier l'origine physique des instabilités dans des conditions contrôlées. Ces expé-

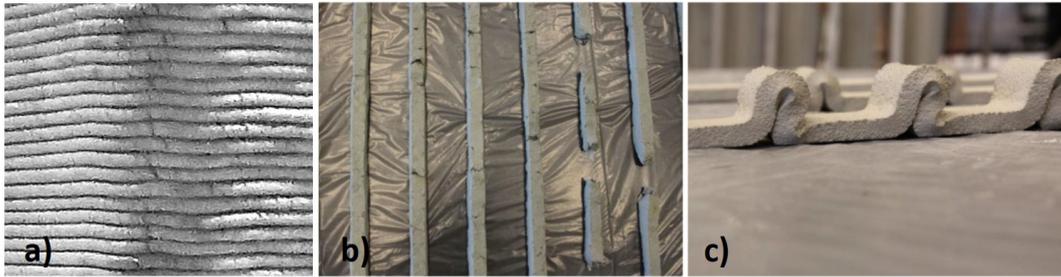


FIGURE 1 – Instabilités au cours du dépôt de fluides à seuil. a) L'impression d'un angle avec un rayon de courbure trop faible entraîne une cassure de la partie extérieure de l'angle (expérience faite au laboratoire Navier). b) Instabilités de rupture et c) instabilités formant des motifs (images b et c issues de WOLFS, SALET et ROUSSEL 2021)

riences doivent solliciter le fluide à seuil étudié dans des modes d'écoulement similaires à ceux que met en jeu le dépôt, tout en restant assez simples pour que nous soyons capables de décrire avec précision les données de l'expérience et en extraire une compréhension théorique.

Alors nous pouvons analyser les différents mécanismes de dépôts à partir d'arguments théoriques simples. Cela nous permet de proposer une cartographie des différentes instabilités ou motifs observés en fonction de paramètres adimensionnels décrivant les conditions aux limites du problème d'écoulement.

Nous commençons par présenter, dans le chapitre 1, les travaux du domaine sur les dépôts et les instabilités de fluides à seuil et d'autres matériaux plus simples, plus largement décrits. Puis, dans la suite de ce même chapitre, nous faisons un bilan de la modélisation et de la caractérisation des lois de comportement dans les différents modes d'écoulement. Le chapitre 2 explique la préparation et fournit la caractérisation des matériaux ainsi que les méthodes utilisées dans les expériences contrôlées et dans les expériences de dépôts. Dans le chapitre 3, nous étudions l'extrusion puis la séparation d'un filament de fluide à seuil, et nous en déduisons une méthode de rhéométrie élongationnelle. Le chapitre 4 complète l'étude du chapitre 3 et amène à une méthode de mesure simple du seuil en élongation. Dans le chapitre 5, nous menons une étude expérimentale des formes des dépôts en faisant varier l'ensemble des paramètres d'impression, ce qui nous permet de construire une cartographie des motifs de dépôts. Cette cartographie est construite en fonction de paramètres adimensionnels décrivant les conditions limites du problème de dépôt et tire parti de la compréhension des expériences contrôlées des chapitres précédents.

Ces travaux ont fait l'objet d'une publication (GEFFRAULT et al. 2021) qui est principalement liée aux travaux du chapitre 3, et d'une autre à paraître, liée aux travaux du chapitre 4.

# Chapitre 1

## Etat de l'art

Dans cet état de l'art, nous commençons par décrire les stratégies utilisées pour imprimer en 3D des matériaux de construction. Nous discutons ensuite des instabilités de flambement de divers fluides complexes et solides élastiques, qui entraînent la formation de motifs complexes dans des conditions particulières d'impression 3D. Dans un troisième temps, nous faisons l'état des connaissances concernant les écoulements mis en jeu lors d'une impression, et sur la caractérisation des fluides à seuil en cisaillement et en élongation.

### 1.1 Impression 3D pour la construction

#### 1.1.1 Principe

Dans le domaine de la construction, les technologies d'impression 3D développées consistent le plus souvent à déposer successivement des couches de matériau les unes sur les autres jusqu'à atteindre la hauteur finale souhaitée. Les matériaux ont comme base des particules de ciment (pour les bétons) ou d'argile (pour la terre), et sont donc des suspensions de particules qui ont une consistance plus ou moins pâteuse. Nous nous concentrons sur la technique d'impression 3D la plus utilisée, qui tire parti de cette caractéristique pâteuse en extrudant un filament qui vient se déposer sur une surface en translation par rapport à la buse, exactement comme lors du dépôt de dentifrice sur une brosse à dent.

Les matériaux pour l'impression 3D ont un caractère pâteux qui se modélise par un comportement de fluide à seuil, c'est-à-dire que ces matériaux sont considérés comme des solides si la contrainte qu'on leur applique est située sous une contrainte « seuil », et comme des liquides au-dessus. Une pâte d'argile est, comme le ciment, une suspension

dont la concentration importante en particules (micrométriques pour les deux) lui confère une structure coincée qui lui donne son seuil. Si on lui applique une contrainte supérieure à la contrainte seuil, cette structure coincée est cassée et la suspension commence à s'écouler. Grâce à cette similitude de structure et de comportement, il est possible de faire des analogies dans les études entre des suspensions d'argile et des suspensions de ciment. Les suspensions d'argile peuvent de plus être considérées comme modèles pour des études sur des terres crues (TOURTELOT et al. 2021).

### 1.1.2 Forme du dépôt par différentes stratégies d'impression

L'extrusion suivie du dépôt du filament, utilisée pour le ciment et l'argile, est aussi la technique utilisée pour les autres fluides à seuil imprimés en 3D. Dans le domaine médical ou alimentaire, les émulsions et les gels sont souvent utilisés. Quel que soit le matériau, l'étape du dépôt est déterminante pour donner sa forme définitive au filament déposé. Une fois que la forme est donnée, d'autres transformations peuvent se produire, qui n'ont pas pour but de modifier la forme du dépôt, mais plutôt de modifier le comportement mécanique de la forme déposée et de fixer la forme finale du filament. Par exemple, des matériaux cellulositiques (figure 1.1 à gauche) ou de la terre crue sont généralement simplement laissés à sécher. Selon les terres, et en particulier selon les argiles qui la composent, le retrait, et donc l'évolution de la forme 3D, peuvent varier. Une suspension d'argile imprimée en 3D pourra aussi être cuite pour en faire une céramique. Les gels peuvent se figer grâce à une réaction (figure 1.1 à droite), et dans le domaine médical, on trouve aussi des formes figées par un refroidissement rapide. Le ciment, lui, subit une réaction d'hydratation qui le fait "prendre". Dans tous les cas, le comportement de fluide à seuil du matériau, indispensable pour la mise en forme, laisse place à un comportement purement solide.

On trouve différentes stratégies d'impression, qui jouent sur la hauteur de buse (distance entre la surface de dépôt et la buse) et la forme de la buse. Le but est toujours d'avoir le meilleur contrôle de la forme du filament déposé ainsi que de l'ensemble de la structure. La hauteur de buse peut théoriquement varier entre une limite basse qui est nulle (buse collée à la surface de dépôt) et une limite haute "infinie". Souvent, les impressions se font à des hauteurs de buse entre  $H = 0^+$ , où le filament est très écrasé, et le diamètre de la buse  $D_0$  (figure 1.2 a)). Dans ce cas, la surface aplanie permet d'avoir un bon contact entre deux couches, mais il faut alors appliquer un effort pour écraser le filament sur le dépôt (CARNEAU et al. 2022).

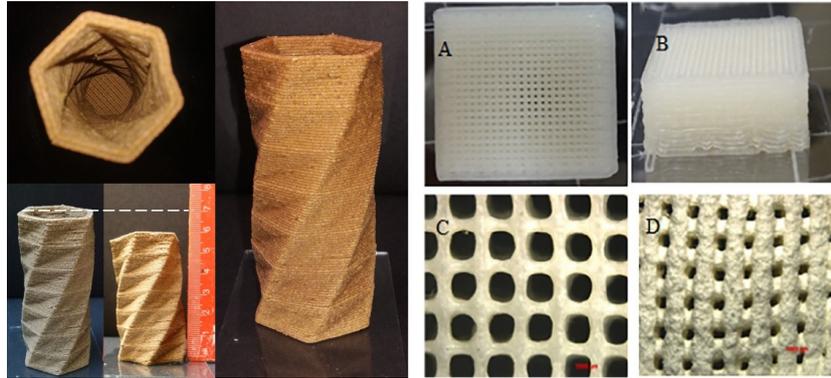


FIGURE 1.1 – Images d'impression par extrusion d'une pâte de bois (travail personnel) et d'un hydrogel fonctionnel (ABOUZEID et al. 2020)

À des hauteurs  $H > D_0$ , il existe deux stratégies principales. Pour certaines impressions, des buses rectangulaires peuvent être utilisées (figure 1.2 b)). Dans ce cas, le fluide doit avoir un seuil suffisamment élevé pour qu'une fois extrudé, il garde une section rectangulaire. Pour garantir la tenue de la section, le seuil est généralement de l'ordre du millier de pascals ou plus. La section rectangulaire permet alors d'avoir une géométrie très bien contrôlée, mais, pour cela, il faut une quantité importante d'énergie pour extruder le matériau. Dans cette technique, avoir une forme totalement fixée est aussi une difficulté, puisqu'il faut alors contrôler exactement les paramètres d'impression pour ne pas que le filament soit en traction ou en compression pendant son dépôt. Si c'est le cas, des instabilités peuvent se développer et perturber le dépôt (voir figure 1.3). Il est aussi possible d'utiliser une buse cylindrique, et il n'est alors pas gênant que le filament s'affaisse un peu sous l'action d'une force extérieure au moment de son dépôt. Cela est même souhaitable car il gagne ainsi en surface de contact (figure 1.2 c)). On peut donc travailler avec des matériaux dont le seuil se situe plutôt à partir de la centaine de pascals, donc un ordre de grandeur de moins que ceux utilisés avec la buse rectangulaire. Mais il est difficile de contrôler la forme d'un filament qui a un seuil faible, puisqu'il se déforme pour des contraintes faibles. Cette stratégie demande donc une compréhension précise des mécanismes des déformations au moment du dépôt, et son applicabilité est limitée par la difficulté à maîtriser la géométrie du dépôt.

Nous souhaitons comprendre les mécanismes de déformation au moment du dépôt de fluides à seuil, et comment ils peuvent amener à la formation de motifs complexes. À notre connaissance, aucun travail antérieur ne s'est intéressé à ces mécanismes dans le cas de fluides à seuil. En revanche, différents travaux, que nous allons examiner dans la section suivante, se sont penchés sur des matériaux aux comportements plus simples.

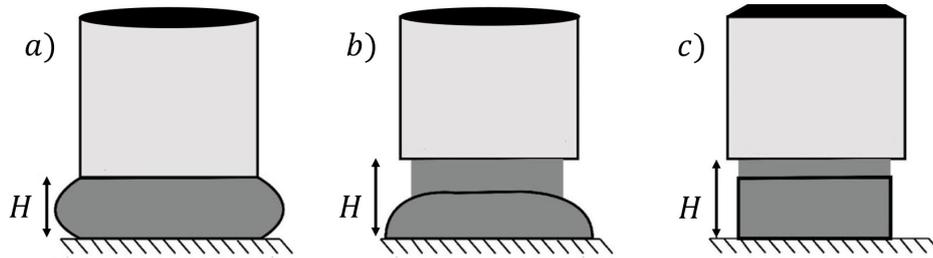


FIGURE 1.2 – Les 3 stratégies d'impression en fonction du type de buse et de sa hauteur. a) buse cylindrique à  $H < D_0$ , b) buse cylindrique à  $H > D_0$ , c) buse rectangulaire à  $H > D_0$



FIGURE 1.3 – Impression d'un ciment par une buse rectangulaire (TU Eindhoven). La quantité de matériau augmente de la couche basse à la couche haute. Lorsque trop de matière est extrudée, le dépôt forme des motifs

## 1.2 Flambement, enroulement et motifs de dépôts

Dans cette section, nous discutons de travaux qui ont été réalisés en parallèle sur des filaments fins élastiques et visqueux. À partir des équations de Kirchhoff-Love qui décrivent de grandes déformations de tiges élastiques (DILL 1992), des études décrivent le pliage d'une feuille (MAHADEVAN et KELLER 1999) ou l'enroulement d'un filament élastique (MAHADEVAN et KELLER 1996). Par analogie avec la tige élastique, il est possible de décrire la dynamique d'un filament fin visqueux (TAYLOR 1969, ENTOV et YARIN 1984). À partir de cela, il a été montré qu'un filament visqueux peut flamber (TCHAVDAROV, YARIN et RADEV 1993), puis s'enrouler (RIBE 2004). Plus récemment, un modèle géométrique (BRUN, AUDOLY et al. 2015) et un modèle numérique (BERGOU, AUDOLY et al. 2010, BRUN 2012) ont bien décrit les motifs que forme un filament vis-

queux lorsqu'il se dépose sur une surface en mouvement. Plusieurs expériences sont venues valider ces modèles (CHIU-WEBSTER et LISTER 2006, MORRIS et al. 2008). Aujourd'hui, il est donc possible de prédire les motifs de dépôts de fluides visqueux et de solides élastiques. La figure 1.4 résume les types d'écoulements rencontrés dans ces travaux. Comme les fluides à seuil sont soit solides soit liquides, il est naturel de s'intéresser d'abord à des études sur les dépôts avec des fluides newtoniens ou des solides élastiques, et de comprendre l'origine des mécanismes de dépôts dans ces cas là.

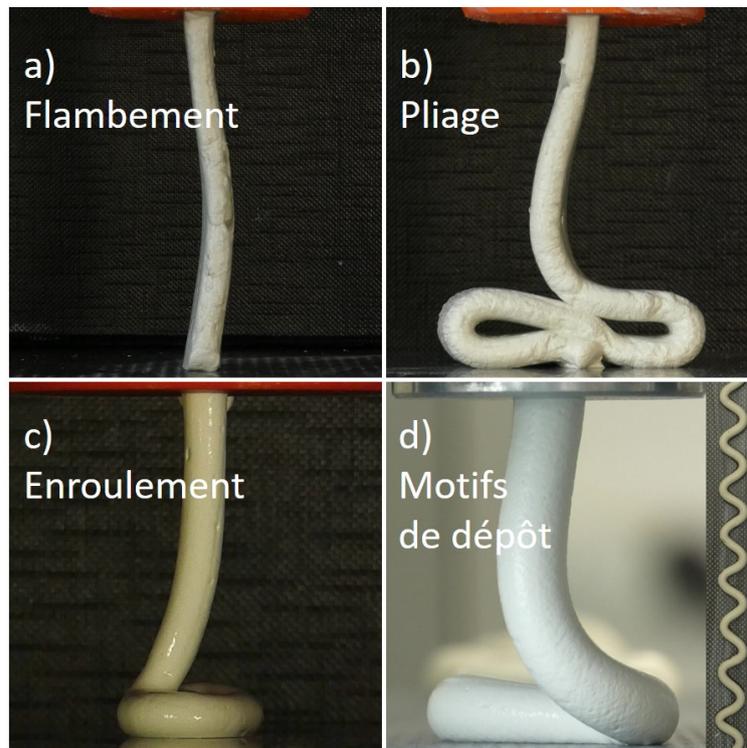


FIGURE 1.4 – Illustration des écoulements décrits dans la littérature : a) flambement, b) pliage, c) enroulement et d) motifs de dépôt (ici, méandres)

### 1.2.1 Dynamique complète par les équations de mouvement

La description des motifs visqueux ou élastiques s'est faite en se plaçant dans le cadre de la théorie des tiges, développée par Kirchhoff et Love sur des tiges élastiques. Ces tiges sont des objets qui se déplacent et qui prennent forme dans un espace 3D, mais qui sont quasiment mono-dimensionnels. Il est possible d'établir des bilans des forces et des moments en chacun de leurs points. Ce sont les mêmes équations dynamiques

de Kirchhoff-Love qui sont utilisées pour les tiges élastiques (MAHADEVAN et KELLER 1996) et pour les filaments visqueux (RIBE 2004). Pour ces derniers, les équations sont en fait celles de Navier-Stokes réduites de la forme 3D à une forme 1D en utilisant le formalisme de Kirchhoff-Love. Les lois de comportement des matériaux permettent ensuite de faire le lien entre la contrainte appliquée et les déformations qui en résultent. Ces relations posent des systèmes d'équations que les conditions aux limites (à l'injecteur et à la surface) permettent de résoudre. Il y a 3 méthodes disponibles pour résoudre ces systèmes : par continuation, par analyse, et de manière "tout numérique". La continuation et l'analyse partent de l'hypothèse que le phénomène est stationnaire. La continuation est une méthode numérique qui part d'une solution analytique qui vérifie les équations du système et qui va trouver la solution qui vérifie aussi les conditions aux limites. L'analyse trouve des solutions seulement dans les cas asymptotiques où une force domine les autres. La manière tout numérique procède comme dans un cas réel, en ajoutant un point de fluide après l'autre. Elle ne fait pas d'hypothèse de stationnarité et rend possible la capture de phénomènes transitoires, qui peuvent avoir lieu notamment lors de l'extrusion avec translation de la surface.

Pour évaluer la possibilité du développement d'un système similaire pour les fluides à seuil, nous avons besoin de détailler les équations pour un fluide visqueux à partir de BRUN 2012. On considère ici un filament fin, qui est repéré par une longueur d'arc  $S$  dont la référence est la longueur d'un filament cylindrique droit de diamètre  $a_0$  (voir figure 1.5). À un temps  $t$ ,  $\mathbf{x}(S, t)$  est la position de la ligne centrale du filament,  $a(S, t)$  le rayon, et  $l(S, t)$  est l'allongement axial par rapport à la configuration de référence. L'hypothèse d'incompressibilité donne :

$$a = a_0/\sqrt{l} \quad (1.1)$$

Les équations du mouvement sont les équations dynamiques de Kirchhoff-Love, utilisées pour la dynamique d'une tige ou d'un filament fin (BRUN, RIBE et AUDOLY 2012) :

$$\frac{\partial \mathbf{n}(S, t)}{\partial S} + \rho A_0 \mathbf{g} = \rho A_0 \frac{\partial^2 \mathbf{x}(S, t)}{\partial t^2} \quad (1.2)$$

$$\frac{\partial \mathbf{m}(S, t)}{\partial S} + \frac{\partial \mathbf{x}(S, t)}{\partial S} * \mathbf{n}(S, t) = \mathbf{0} \quad (1.3)$$

où  $\mathbf{n}$  est la force interne agissant sur la ligne centrale du filament,  $\rho$  la masse volumique supposée constante,  $A_0 = \pi a_0^2$  la section du filament de référence,  $\mathbf{g}$  la gravité et  $\mathbf{m}$  le moment interne agissant sur la ligne centrale. Ici, nous négligeons la tension de surface dans l'équilibre des forces. Nous négligeons aussi l'inertie rotationnelle dans

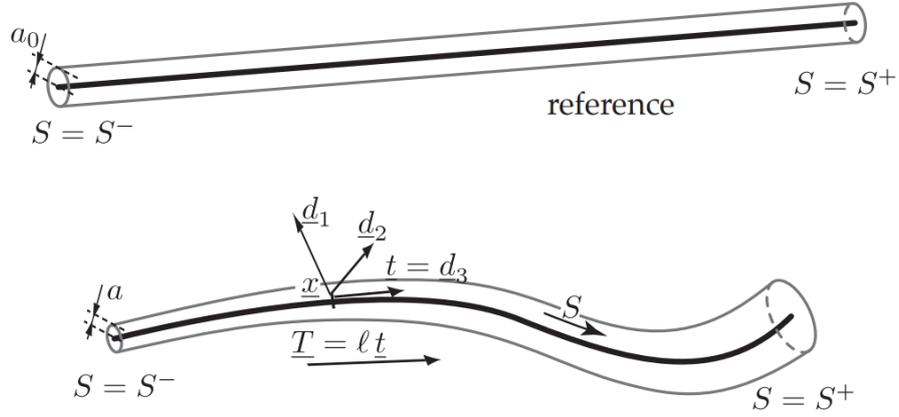


FIGURE 1.5 – Filament fin dans un état de référence et à  $t$  dans le formalisme de BRUN 2012.  $\mathbf{d}_3$  est la tangente unitaire à la ligne centrale et  $\mathbf{d}_1$  et  $\mathbf{d}_2$  sont dans la section du filament.

l'équilibre des moments, comme RIBE, HABIBI et BONN 2006.

Brun introduit alors les lois de comportement du fluide visqueux avec la formulation suivante :

$$\mathbf{n}(S, t) \cdot \mathbf{d}_3(S, t) = 3\mu A \dot{\epsilon}_S \quad (1.4)$$

$$\mathbf{m}(S, t) = 3\mu I \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 2/3 \end{bmatrix} \cdot \dot{\epsilon}_{TB} \quad (1.5)$$

avec  $\mu$  la viscosité du fluide,  $A = \pi a^2$  la section et  $I = \pi \frac{a^4}{4}$  le moment d'inertie.

$\dot{\epsilon}_S$  et  $\dot{\epsilon}_{TB}$  capturent respectivement les taux de déformation associés à l'étirement dans le sens de l'axe du filament et ceux associés à la flexion et torsion de manière combinée. Ces taux sont définis par des expressions détaillées dans BRUN 2012. L'écriture des relations constitutives du matériau sous la forme des équations 1.4 et 1.5 est nécessaire pour exprimer les potentiels de Rayleigh, qui sont une écriture des énergies potentielles de dissipation visqueuse adaptée aux tiges. Cette écriture est a priori la seule assez efficace pour résoudre numériquement le problème du dépôt sur une surface en mouvement. Le potentiel de Rayleigh total est la somme des potentiels d'étirement, de flexion et de torsion. Cet ensemble permet de décrire la dynamique de filaments newtoniens.

Il est possible de poursuivre l'analyse sur des filaments présentant des comportements rhéoépaississants ou rhéofluidifiants (PEREIRA, HACHEM et VALETTE 2020, PEREIRA, VALADE et al. 2021). Dans ce cas, les équations 1.4 et 1.5 sont réutilisées en écrivant le terme de viscosité de manière à tenir compte de son indice d'écoulement. Pour ces matériaux, le caractère non-newtonien joue un rôle quand la gravité ou l'inertie deviennent importantes. Dans ce cas, l'amplitude du pliage ou de l'enroulement augmente avec le rhéoépaississement. À l'inverse, quand les effets inertiels ou gravitaires sont négligeables, les dépôts sont les mêmes que pour les fluides newtoniens et les solides élastiques et ne dépendent pas des propriétés du matériau. Ce résultat pourrait naturellement être extrapolé à des fluides à seuil, qui sont des fluides non-newtoniens au comportement un peu plus complexe. Mais on peut aussi se demander si la spécificité de ces fluides, l'existence d'un régime solide et d'un régime liquide, ne peut pas induire des effets particuliers. L'idéal serait donc de pouvoir prolonger l'approche en introduisant une loi de comportement de fluide à seuil.

Des modèles utilisés pour divers problèmes de simulation de fluides à seuil permettent d'écrire une loi de comportement pour les fluides à seuil en gardant la forme  $\Sigma = \mu \mathbf{D}$ , où  $\mu$  est maintenant fonction de la contrainte seuil  $\tau_c$ , de la consistance  $K$  et de l'indice d'écoulement  $n$  (régularisation de Papanastasiou ou méthodes variationnelles (PAPANASTASIOU 1987, DIMAKOPOULOS et al. 2018)).  $\Sigma$  est le tenseur des contraintes et  $\mathbf{D}$  est le tenseur des taux de déformations. Ces modèles se montrent pertinents pour résoudre numériquement des écoulements de réduction de section, d'écrasement, ou bien des écoulements autour d'une sphère (MITSOULIS et TSAMOPOULOS 2017). A priori, il est donc possible de faire des analyses de flambement, d'enroulement ou de dépôts sur une surface mobile avec des fluides à seuil. Mais cela pose des problèmes. D'abord, cette écriture de la viscosité est purement adaptée à l'application numérique. Elle est une approximation de l'expression qui décrit généralement un fluide à seuil en écoulement de cisaillement et qui s'écrit  $\tau = \tau_c + K * \dot{\epsilon}^n$ . Mais surtout, on voit qu'elle fait intervenir des résultats du cisaillement pour décrire des déformations d'élongation. Or, pour les fluides à seuil, le comportement en élongation a été beaucoup moins étudié que le comportement en cisaillement et est toujours un sujet de discussion. Nous dresserons un bilan plus détaillé de la caractérisation des écoulements de fluides à seuil dans la section suivante.

Cette raison nous fait écarter l'idée de la résolution numérique de la dynamique de filaments de fluides à seuil à partir des équations de BRUN 2012. En revanche, des éléments des études sur les filaments visqueux et élastiques vont apporter des éclairages supplémentaires pour comprendre la dynamique de dépôt des filaments de fluides à seuil.

### 1.2.2 Éclairages supplémentaires

Nous considérons ici un certain nombre de travaux que nous analysons séparément en fonction du type d'écoulement (flambement, pliage, enroulement ou motifs de dépôts, voir figure 1.4) et du matériau utilisé.

Enroulement de fluides à seuil : Comme un fluide à seuil a un comportement solide dans une certaine gamme de contraintes, et fluide dans une autre, on pourrait utiliser les résultats de la tige élastique sous le seuil et/ou ceux du filament visqueux au-dessus du seuil. C'est ce qu'ont fait RAHMANI et al. 2011 pour l'enroulement d'une mousse à raser et d'un gel à cheveux, deux fluides viscoélastiques. L'enroulement de tiges élastiques et de filaments visqueux dispose de solutions analytiques lorsqu'une force domine les autres. Lorsque c'est la gravité qui domine l'inertie et la viscosité, les solutions de la fréquence d'enroulement sont de la forme  $\Omega_{\text{élastique}} = f(E)$  (avec  $E$  le module élastique du matériau) et  $\Omega_{\text{visqueux}} = f(\mu)$ . En observant la fréquence d'un enroulement, les auteurs mesurent un module élastique efficace qui leur donne une idée de la contrainte imposée au filament. Si ce module est inférieur au seuil, il est attendu que le fluide à seuil s'enroule suivant la théorie élastique, et sinon, il devrait s'enrouler comme un fluide visqueux de viscosité  $\mu$ . Une autre possibilité pour les fluides à seuil consiste à considérer qu'ils se déposent nécessairement dans le régime asymptotique visqueux. Pour décrire ce régime où la viscosité domine l'inertie et la gravité, Brun écrit justement que le dépôt correspondrait à celui d'une pâte de dentifrice (qui est en fait un fluide à seuil) déposée depuis une hauteur pas trop grande (BRUN 2012). L'écriture de la loi de comportement d'un fluide à seuil ci-dessus (adaptée aux résolutions numériques) et la résolution des équations pourraient permettre d'appuyer cette idée. En effet, elle consiste à décrire le fluide à seuil en lui donnant seulement une viscosité variable - très grande sous le seuil, et plus faible au-dessus - de manière à avoir une transition continue autour du seuil (PAPANASTASIOU 1987, DIMAKOPOULOS et al. 2018).

Flambement de filaments élastiques et visqueux : Taylor décrit une instabilité visqueuse comme du flambement visqueux dans TAYLOR 1969, par analogie avec le flambement élastique qui avait déjà été décrit par Euler (EULER 1744). Taylor montre un enroulement de glycérine (sous gravité réduite) et des motifs de méandres sous gravité nulle, dont il souligne la ressemblance avec les motifs de l'Elastica d'Euler montrés dans LOVE 1927. Le flambement d'une tige élastique est à ce moment déjà bien caractérisé par le flambement décrit par Euler et la théorie des tiges de Kirchhoff et Love. ENTOV

et YARIN 1984 dérivent un système d'équations pour décrire la dynamique d'un jet de fluide dans un formalisme similaire à celui des tiges.

Enroulement de filaments élastiques et visqueux : TCHAVDAROV, YARIN et RADEV 1993 utilisent l'approche d'ENTOV et YARIN 1984 pour trouver le démarrage du flambement et la fréquence d'enroulement d'un filament visqueux. MAHADEVAN et KELLER 1996 dérivent un système d'équations similaires pour décrire l'enroulement d'une corde élastique. Ils résolvent complètement le problème non-linéaire (système du 13ème ordre) par une méthode numérique de continuation et donnent des solutions asymptotiques analytiques (régimes gravitaire, élastique et inertiel). RIBE 2004 fait le travail analogue pour décrire l'enroulement d'un filament visqueux en résolvant son système (du 17ème ordre cette fois), toujours par continuation numérique, et en donnant des solutions asymptotiques des régimes visqueux, gravitaire et inertiel. Depuis, plusieurs travaux ont permis de compléter numériquement et de valider expérimentalement ces résultats (visqueux : MALEKI et al. 2004, RIBE, HABIBI et BONN 2006, HABIBI, RAHMANI et al. 2010, BRUN 2012; élastiques : HABIBI, RIBE et BONN 2007).

Motifs de dépôts de filaments élastiques et visqueux : Ce sont d'abord des résultats expérimentaux et des premiers aspects de résolution théorique qui ont été présentés (CHIU-WEBSTER et LISTER 2006, MORRIS et al. 2008, HABIBI, NAJAFI et RIBE 2011). Une nouvelle méthode de résolution numérique a permis d'aller plus loin et de simuler les motifs de dépôt sur un convoyeur avec un très bon accord entre simulations et expériences. Cette méthode a été développée par Bergou et s'adapte à des filaments élastiques (BERGOU, WARDETZKY et al. 2008) et visqueux (BERGOU, AUDOLY et al. 2010). L'écriture des forces sous forme d'énergies potentielles (potentiels de Rayleigh) permet une simulation robuste même en cassant la stationnarité de problème (i.e. passage d'un enroulement stationnaire à un dépôt sur une surface mobile). Plus récemment, BRUN, AUDOLY et al. 2015 ont proposé un modèle géométrique qui décrit aussi bien les motifs et ne nécessite pas de résoudre les systèmes d'équations complexes comme cela a été le cas dans BRUN 2012. En se mettant dans les conditions pour s'affranchir des effets inertiels, la balance des forces visqueuses et gravitaires donne suffisamment d'information pour faire évoluer correctement les inconnues du problème que sont la position et l'orientation du point de contact du filament avec la surface. YUK et ZHAO 2018 utilisent le travail de BRUN, AUDOLY et al. 2015 dans un cas particulier où l'étirement de leur filament du fait de la gravité est négligeable. Ils contrôlent alors les motifs avec la vitesse de déplacement de leur buse et la vitesse de sortie de leur filament et peuvent utiliser ces résultats pour proposer de nouvelles stratégies d'impression 3D. En addition à ces travaux, on mentionne le problème géométrique de l'Elastica d'Euler (EULER 1744) qui

cherche les solutions de la courbe qui minimise l'énergie de flexion d'un arc de longueur  $S$  posé sur une longueur inférieure. Cette courbe va chercher à minimiser sa courbure sur l'ensemble de sa longueur. L'Elastica a pour solutions un certain nombre de motifs, montrés sur la figure 1.6, similaires à ceux des expériences précédentes.

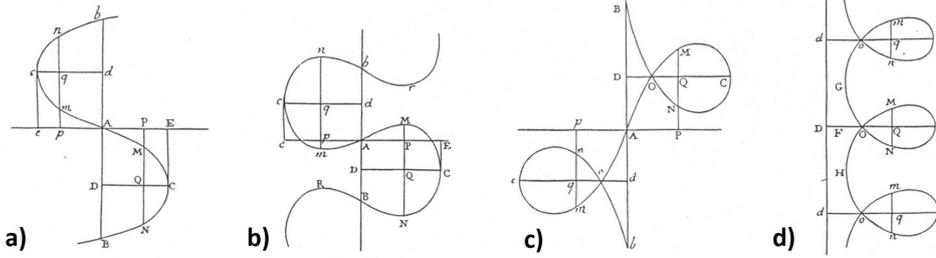


FIGURE 1.6 – Motifs de l'Elastica d'Euler. Les motifs a), c) et d) sont ceux rencontrés dans les expériences de dépôts.

### 1.2.3 Modes de flambement

Pour un solide élastique, le flambement est décrit par la théorie d'Euler (EULER 1744). Celle-ci stipule que lorsqu'une tige élastique est comprimée, elle va fléchir si la flexion est moins énergivore que la compression homogène. En supposant que la tige s'écarte de son axe d'une petite quantité  $\delta$ , le moment associé à la force de compression  $F$  est  $F * \delta$ . Ce moment est équilibré par un moment de résistance à la flexion  $ED_0^4 * \kappa = ED_0^4 * \frac{\delta}{H^2}$ , où  $E$  est le module élastique du filament,  $D_0$  son diamètre,  $\kappa$  sa courbure et  $H$  sa longueur. On peut alors déduire un critère de flambement élastique

$$H_{crit}^{elastique} \approx D_0 \left( \frac{E}{\sigma} \right)^{1/2} \quad (1.6)$$

avec  $\sigma = \frac{F}{D_0^2}$ . On peut aussi expliciter la force  $F$  en fonction de la hauteur écrasée  $\Delta H$ , ce qui donne  $\sigma = E * \frac{\Delta H}{H}$ , et donc

$$\frac{\Delta H}{H} \approx \frac{D_0^2}{L^2} \quad (1.7)$$

Matériaux élasto-plastiques ou élasto-viscoplastiques : D'autres développements ont été proposés pour décrire le flambement de solides élasto-plastiques, généralement des métaux. Dans ce cas, le démarrage du flambement est décrit classiquement par l'élasticité, mais le matériau atteint vite des déformations supérieures à une limite élastique. Alors, le matériau se déforme de manière plastique (irréversible). On parle de bifurca-

tion plastique. Un des modèles de base consiste à remplacer dans la formule d'Euler le module élastique par un module tangent. Ce module est la tangente à la courbe de la contrainte en fonction de la déformation. Il est aussi possible d'ajouter de la viscosité et traiter un matériau élasto-viscoplastique (MIKKELSEN 1993). Les fluides à seuil qui ont un comportement essentiellement élastique sous le seuil peuvent être décrits comme des matériaux élasto-viscoplastiques. Ce type de description du flambement pourrait donc être pertinent.

Matériaux visqueux : Pour les fluides visqueux, RIBE, HABIBI et BONN 2011 trouvent, à partir de l'équilibre des moments

$$H_{crit}^{visqueux} \approx D_0 \quad (1.8)$$

On peut faire un développement similaire au flambement élastique pour décrire la compression d'un filament visqueux comprimé à une vitesse  $U$ . Le moment de résistance à la flexion vaut  $\mu D_0^4 \dot{\kappa} = \mu D_0^4 * \frac{\dot{\delta}}{L^2}$  (LE MERRER, QUÉRÉ et CLANET 2012), donc l'équilibre des moments entre le moment de compression  $\sigma D_0^2 * \delta$  et le moment de résistance à la flexion s'écrit

$$\sigma D_0^2 * \delta \approx \mu D_0^4 * \frac{\dot{\delta}}{H^2} \quad (1.9)$$

Ce qui implique

$$H_{crit}^{visqueux} \approx D_0 \left( \frac{\mu}{\sigma} t \right)^{1/2} \quad (1.10)$$

En explicitant la contrainte de compression, on trouve

$$\mu D_0^2 * \frac{U}{H} \delta \approx \mu D_0^4 * \frac{\dot{\delta}}{H^2} \quad (1.11)$$

$$\frac{Ut}{H} \approx \frac{D_0^2}{H^2} \quad (1.12)$$

t le temps pour flamber doit être inférieur  $\frac{H}{U}$  et expérimentalement, LE MERRER, QUÉRÉ et CLANET 2012 trouvent  $t \approx \frac{1}{20} * \frac{H}{U}$ . On retrouve le critère de flambement de RIBE, HABIBI et BONN 2011 avec un coefficient 4.5

$$H_{crit}^{visqueux} \approx 4.5 D_0 \quad (1.13)$$

Matériaux plastiques ou viscoplastiques : PEREIRA, KHALLOUFI et al. 2018 ont comparé les énergies dissipées par un filament dans le cas d'une compression homogène et dans le cas d'un flambement, comme pour les flambements visqueux et élastiques. Cela

leur a permis de traiter du cas du nappage d'un fluide à seuil (dans une communication orale au moment de ma rédaction), dans la continuité de PEREIRA, VALADE et al. 2021. À ma connaissance, le calcul de la puissance dissipée plastique a seulement fait l'objet d'une communication orale (PEREIRA, KHALLOUFI et al. 2018) dont j'ai pris connaissance au moment de ma rédaction, grâce à la communication orale sur le nappage de fluides à seuil.

Les travaux de cette section et de la précédentes nous donnent une compréhension et un formalisme pour aborder nos résultats :

- Le flambement est le phénomène à l'origine de l'instabilité. Il existe différents critères selon le type de matériau étudié. Les suspensions d'argile ou de ciment ont un domaine élastique faible (on le montrera dans le chapitre 2). Ils se déforment surtout de manière plastique avant le seuil. On pourra tester la cohérence des critères obtenus plus haut en fonction des données expérimentales, et éventuellement imaginer un flambement avec une origine plastique.
- Dans le travail sur l'enroulement d'un fluide visqueux, des régimes asymptotiques sont obtenus dans RIBE 2004. En particulier, la description du régime visqueux par l'auteur ressemble à une situation d'impression 3D : un fluide à seuil (pâte de dentifrice) qui se dépose depuis une hauteur pas très grande. Dans ce cas particulier, le critère de flambement, c'est-à-dire le critère d'apparition d'un enroulement, est purement géométrique et nécessite que  $\frac{H}{D_0}$  soit supérieur à environ 4. Ce critère pourra être un point de comparaison de nos résultats théoriques ou expérimentaux.
- Les motifs sont catégorisés, d'abord en créant un grand nombre de catégories (CHIU-WEBSTER et LISTER 2006, MORRIS et al. 2008, HABIBI, NAJAFI et RIBE 2011) puis en réduisant aux catégories les plus fréquentes et les plus étudiées (BRUN, AUDOLY et al. 2015, YUK et ZHAO 2018).
- Dans les bonnes conditions de matériau et d'impression, YUK et ZHAO 2018 introduisent les paramètres adimensionnels  $H^* = H/D_0$  et  $V^*$  le rapport de la vitesse de déplacement de leur buse sur la vitesse de sortie de leur filament. Dans les autres études, qui exploraient des conditions plus larges, il était nécessaire d'utiliser des paramètres adimensionnés différents qui prenaient en compte des paramètres matériaux (BRUN, AUDOLY et al. 2015).

## 1.3 Caractérisations des fluides à seuil

### 1.3.1 Définitions

Les matériaux que nous utilisons sont classiquement décrits comme se comportant comme des solides si la contrainte qu'on leur applique est située sous une contrainte "seuil", et comme des liquides au-dessus. Ils sont décrits comme viscoplastiques (visqueux dans leur régime liquide, et plastiques à cause du seuil). La majorité des applications de ces fluides à seuil mettent en jeu des écoulements où les déformations sont grandes et où il faut s'intéresser aux taux de déformations ou à la viscosité des fluides. Les descriptions habituelles se contentent généralement de donner la loi d'écoulement dans le domaine liquide. Les déformations sous le seuil peuvent parfois être prises en compte, montrant un caractère élastique, plastique ou visqueux (fluage) en-dessous du seuil de contrainte. Dans l'impression 3D, les déformations sont de l'ordre des déformations seuil, c'est-à-dire des déformations subies quand la contrainte approche du seuil de contrainte. La connaissance des lois de déformation en-dessous et au-dessus du seuil est donc importante pour décrire les déformations au moment du dépôt dans l'impression 3D.

#### Cisaillement simple

Le déplacement de cisaillement simple correspond au déplacement relatif de deux plans de fluide ou de solide en parallèle. Pour caractériser un écoulement de cisaillement, on définit un gradient de vitesse  $\dot{\gamma}$  par la différence de vitesse entre les plans divisée par leur distance, et une contrainte tangentielle qui est la contrainte imposée sur les plans et qui tend à induire ce mouvement. Dans le repère adapté, le cisaillement simple est tel que le tenseur des taux de déformations peut s'écrire

$$\mathbf{D} = \frac{\dot{\gamma}}{2} \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.14)$$

#### Élongation

L'écoulement d'élongation est tel que, dans le repère adapté, son tenseur des taux de déformations peut s'écrire

$$\mathbf{D} = \dot{\epsilon} \begin{bmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & c \end{bmatrix} \quad (1.15)$$

où a, b et c sont des coefficients dont la somme est nulle si le volume est conservé au cours

de l'écoulement. Si l'élongation est simple uniaxiale, elle est caractérisée par un gradient de vitesse  $\dot{\epsilon}$  qui est la vitesse longitudinale sur la distance sur laquelle des particules sont déplacées et une contrainte normale nécessaire pour déplacer les particules à cette vitesse. Son tenseur des taux de déformations s'écrit

$$\mathbf{D} = \dot{\epsilon} \begin{bmatrix} -\frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (1.16)$$

### 1.3.2 Mesure des propriétés de cisaillement

La dynamique d'un écoulement varie selon les propriétés du matériau en écoulement, mesurables grâce à des écoulements dits viscométriques. Le déplacement de deux plaques parallèles en translation en est un, qui caractérise un matériau en cisaillement, et est utilisé par exemple dans les géosciences. Mais, pour les fluides à seuils (ainsi que pour la plupart des liquides), les déformations mesurées sont souvent grandes, donc il faut des géométries mieux adaptées. On peut alors utiliser deux disques parallèles de rayon  $R$  et séparés d'une hauteur  $H$  en rotation à des vitesses différentes. De cette manière, les déformations mesurées peuvent être infinies. À la différence des deux plaques, les déformations au centre et à l'extrémité des disques sont différentes. En particulier, on ne connaît pas le champ des contraintes dans l'entrefer (entre les deux disques). L'effort total est en grande partie dû aux efforts près de l'extérieur puisqu'il faut faire se déplacer plus de fluide et à plus grande vitesse qu'à l'intérieur. Avec cette observation, il est possible d'avoir une mesure macroscopique approximative de la contrainte de cisaillement moyenne  $\tau = 3M/2\pi R^3$ , avec  $M$  le couple appliqué au disque supérieur. Avec le même raisonnement, on mesure le taux de déformation moyen  $\dot{\gamma} = \Gamma R/H$  avec  $\Gamma$  la vitesse de rotation relative des disques. Un écoulement similaire se produit dans une géométrie "Couette", où deux cylindres concentriques de rayons  $R_1$  et  $R_2 > R_1$  et de même hauteur  $H$  sont en rotation l'un par rapport à l'autre. On peut voir cette géométrie comme si on avait pris la géométrie basique des deux plaques en translation, et qu'on les avait tordues pour joindre leurs extrémités. L'écoulement y est donc similaire, mais les déformations peuvent être infinies. Dans le cas où la différence de diamètre est faible entre les deux cylindres, les contraintes et taux de cisaillement sont exprimés par les équations  $\tau = M/2\pi H R_1^2$  et  $\dot{\gamma} = \Gamma R_1/(R_2 - R_1)$  (COUSSOT 2005).

### 1.3.3 Écoulements de l'impression 3D

Dans l'impression 3D pour la construction, que ce soit avec du ciment ou un autre matériau pâteux, il y a toujours un transport de matière dans une conduite, suivi du passage dans une réduction de section, puis un dépôt sur une surface. Le procédé est illustré pour un polymère thermoplastique en figure 1.7. Il est similaire pour un matériau pâteux en omettant les apports et transferts de chaleur. Nous résumons ici les travaux antérieurs portant sur les écoulements avant la sortie de buse. Cela nous permettra d'établir l'état dans lequel arrive le matériau en sortie de buse.

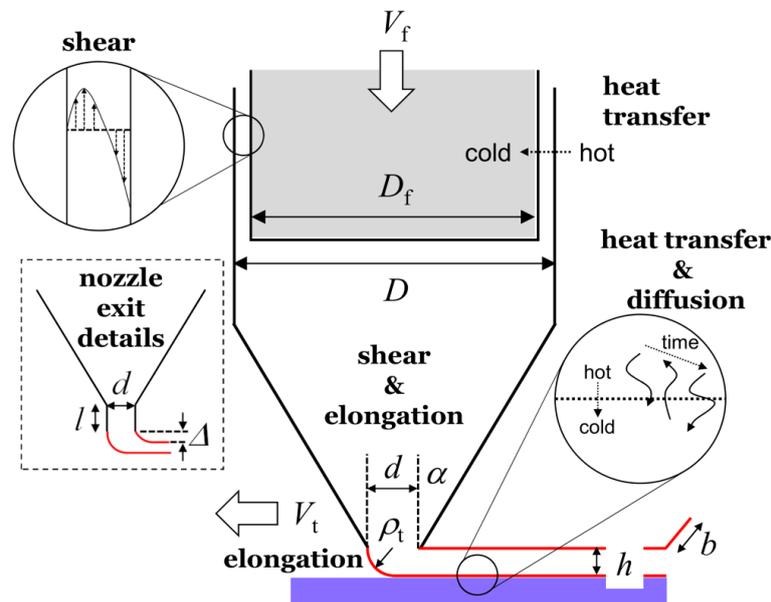


FIGURE 1.7 – Écoulements dans l'impression 3D de polymère. Le polymère est soumis successivement à des écoulements de cisaillement et/ou d'élongation (MACKAY 2018)

#### Écoulement dans la conduite

Il est généralement considéré que la pression est uniforme sur une section de la conduite, et qu'elle varie dans la direction de l'écoulement seulement. En supposant qu'il n'y a pas de glissement aux parois, un bilan des forces montre que l'écoulement met principalement en jeu du cisaillement, avec une distribution de la contrainte de la forme  $\tau = \frac{r\Delta p}{2L}$  avec  $r$  la distance au centre de la conduite,  $\Delta p$  la différence de pression entre les deux extrémités de la conduite et  $L$  la longueur de la conduite. Cela implique que pour un fluide à seuil avec un seuil en cisaillement  $\tau_c$ , il y a un écoulement en bloc pour  $r < \frac{2L\tau_c}{\Delta p}$  (COUSSOT 2005).

#### Réduction de section

Avant la sortie de buse, le matériau rencontre deux réductions de section : d'abord pour passer d'un gros contenant à la conduite, puis surtout dans la buse juste avant l'extrusion. La réduction de section peut se faire de manière plus ou moins abrupte. Dans une telle configuration, a priori un écoulement en bloc ne peut plus exister puisque le "bloc" est forcé de se déformer donc varie avec la variation du diamètre. RABIDEAU, MOUCHERONT, BERTRAND, RODTS, MÉLINGE et al. 2012 traitent d'une réduction soudaine du diamètre et visualisent les champs de vitesse par imagerie par résonance magnétique (IRM). Dans la zone d'accélération du matériau près de la réduction de section, le rapport entre la vitesse locale et la vitesse du piston ne varie quasiment pas avec la vitesse du piston. Autrement dit, le champ de vitesses garde la même forme quelle que soit la vitesse du piston. Il y a notamment des zones mortes aux mêmes endroits. Avec un matériau thixotrope à différent temps de repos dans le contenant, les auteurs trouvent aussi le même champ de vitesse et les mêmes zones d'écoulement "bloc". Cela suggère qu'un matériau thixotrope est bien mélangé au passage de la section malgré des temps dans le contenant qui peuvent varier. On imagine en particulier qu'un ciment extrudé à des vitesses différentes et à des moments différents est dans un état très « déstructuré » juste en sortie.

#### Dépôt du filament

À la sortie de la buse, on a vu que plusieurs stratégies d'impression pouvaient être utilisées : le filament peut sortir d'une buse cylindrique et prendre forme en étant soumis à diverses forces extérieures ou il peut déjà avoir sa forme imposée par la géométrie de la buse. Lorsque la hauteur de buse est choisie inférieure au diamètre de la buse, le filament va s'écraser (CARNEAU et al. 2022). Au cours d'un écrasement sans translation de la buse, si l'épaisseur entre les deux plaques est faible devant l'étalement, le fluide va être principalement cisailé. Dans les conditions où son diamètre vaut à peu près sa hauteur, on peut considérer qu'une partie près des surfaces est cisailée, et une partie loin des surfaces est étirée. Plus la hauteur augmente, plus les propriétés d'élongation sont importantes. Lors d'une impression, la buse est en mouvement, ce qui complique encore l'écoulement. On peut l'interpréter comme l'action d'une plaque en translation qui cisaille, mais qui amène aussi une flexion du filament (voir figure 1.7). Dans le cas où la hauteur de buse est supérieure au diamètre du filament, on force la flexion du filament au cours de son dépôt. Cela est particulièrement le cas lorsque la buse a une section rectangulaire car le filament, dont la forme est fixée par la buse, ne peut pas avoir d'autre modes de déformation comme de l'écrasement ou de la torsion. Pour cette raison d'ailleurs, cette stratégie est peu robuste vis-à-vis des paramètres d'impression au

sens qu'une faible variation des paramètres de vitesse d'impression a un impact fort sur la qualité du dépôt.

Enfin, on peut remarquer que les propriétés de déformation maximale en élongation sont particulièrement intéressantes pour faire du remplissage de structures 3D (NELSON et al. 2019). Il est nécessaire pour cela de maîtriser l'allongement et la formation de ponts sans casser le filament.

Ainsi, quelles que soient les stratégies de dépôt adoptées, il devient important de connaître les propriétés d'élongation pour maîtriser les écoulements de dépôt et la forme des objets construits en 3D.

#### 1.3.4 Modélisation et mesure des propriétés d'élongation

##### 1.3.4.1 Modélisation de Herschel Bulkley 3D (HB 3D)

Le modèle classiquement utilisé et les raffinements autour de ce modèle partent de l'idée qu'on peut décrire le comportement d'un matériau pâteux en distinguant la description en une partie de déformations solides quand la contrainte est inférieure à un seuil, et une partie de déformations liquides quand la contrainte est supérieure à ce seuil. Oldroyd, en énonçant son modèle (OLDROYD 1947), a proposé une forme tensorielle de loi de comportement qui peut être utilisée pour tout type d'écoulement (cisaillement, élongation ou les deux). Elle s'écrit de la façon suivante (COUSSOT et ROGERS 2021) :

$$\text{Région élastique : pour } \sqrt{-T_{II}} < \tau_c, \mathbf{T} = 2G\mathbf{E} \quad (1.17)$$

où  $\mathbf{T} = \boldsymbol{\Sigma} + p\mathbf{I}$  est le déviateur du tenseur des contraintes (avec  $p$  la pression et  $\mathbf{I}$  le tenseur unitaire),  $T_{II} = -tr(\mathbf{T})^2/2$  le second invariant de  $\mathbf{T}$ ,  $G$  le module de cisaillement et  $\mathbf{E}$  le tenseur des déformations

$$\text{Région plastique : pour } \sqrt{-T_{II}} > \tau_c, \mathbf{T} = (2\eta + \frac{\tau_c}{\sqrt{D_{II}}})\mathbf{D} \quad (1.18)$$

où  $\mathbf{D}$  est le tenseur des taux de déformations,  $D_{II} = -tr(\mathbf{D})^2/2$  le second invariant de  $\mathbf{D}$  et  $\eta$  un terme rendant compte de la viscosité.

En pratique, on utilise souvent une écriture de la région solide où il est simplement supposé que le taux de déformation est nul sous le seuil. De cette manière, la description est valable pour des matériaux qui ne sont pas purement élastiques sous le seuil. Les déformations sous le seuil ne sont donc pas décrites car dans de nombreuses applications,

les déformations sont très grandes, et donc ce qui s'est passé aux faibles déformations du régime solide ne joue pas un rôle très important.

Le seuil est donné par un critère énergétique relié à un invariant. Si la forme du critère dépendait du repère utilisé, le critère ne serait pas intrinsèque au matériau. OLDROYD 1947 a proposé de décrire le seuil à partir d'un critère de Von Mises, utilisant le second invariant du tenseur des contraintes. Ce critère s'est montré très bien adapté et est toujours utilisé aujourd'hui. On peut tout de même noter qu'il aurait pu être construit en considérant également les premier et troisième invariants, mais ces invariants sont nuls dans les écoulements de cisaillement. Comme les paramètres des fluides à seuil ont généralement été obtenus en cisaillement, l'influence des premier et troisième invariants a été ignorée.

Lorsque le seuil de contrainte a été dépassé, le modèle de HB 3D prédit que le fluide à seuil s'écoule en suivant une loi de puissance. Généralement, on écrit le terme  $\eta$  comme une fonction de la consistance  $K$  et de l'indice d'écoulement  $n$  telle que l'équation 1.18 se réécrit

$$\text{Région plastique : pour } \sqrt{-T_{II}} > \tau_c, \mathbf{T} = \left( \frac{2^n K}{(\sqrt{D_{II}})^{n-1}} + \frac{\tau_c}{\sqrt{D_{II}}} \right) \mathbf{D} \quad (1.19)$$

En cisaillement simple, le comportement se décrit par l'équation

$$\tau = \tau_c + K \dot{\varepsilon}^n \quad (1.20)$$

et en élongation par

$$\tau = \sqrt{3}(\tau_c + K(\sqrt{3}\dot{\varepsilon})^n) \quad (1.21)$$

Ce modèle rend bien compte du comportement en cisaillement simple des fluides à seuil lorsque l'écoulement est permanent. Mais pour se replacer dans les écoulements d'impression de la section 1.3.3, il faut avoir conscience que ce modèle 3D a une forme tensorielle qui lui permet de décrire des écoulements complexes (mêlant élongation et cisaillement) comme étudiés ici, mais que sa validité reste à démontrer expérimentalement.

#### 1.3.4.2 Expériences d'élongation sur d'autres matériaux

Les expériences d'élongation sont beaucoup plus classiques sur d'autres matériaux que les fluides à seuil et, comme on a dit qu'un fluide à seuil était bien décrit comme une addition de deux types de comportements solide et liquide, on peut regarder d'autres

matériaux solides ou liquides, comme les métaux et les polymères. Pour des polymères, il est classique de mesurer des propriétés d'étirement en étirant un filament fin de polymère, et en regardant l'évolution de son rayon à mi-hauteur en fonction de la contrainte appliquée. Le principe est que la forme reste cylindrique, ce qui assure un écoulement purement élongationnel (MCKINLEY et TRIPATHI 2000, YARIN et al. 2004), comme illustré par la figure 1.8 a). La même idée est adaptée pour les métaux où une éprouvette est fixée entre deux mors et est étirée. Cette fois, la faible déformation atteinte à la limite d'élasticité assure que la forme reste cylindrique jusqu'à l'entrée dans le domaine plastique, qui est facilement identifiable. Pour utiliser ces opérations avec des fluides à seuil, il faudrait pouvoir étirer tout en gardant une forme cylindrique jusqu'à la rupture pour avoir accès au comportement à la fois aux faibles déformations solides et aux grandes déformations liquides. Mais, pour un fluide à seuil, la cassure se fait en formant deux cônes, ou peut même développer une instabilité de Saffman-Taylor lorsque le cylindre de matériau a un rapport d'aspect initial faible (voir figure 1.8 b) et c)). Cela complexifie grandement l'écoulement.

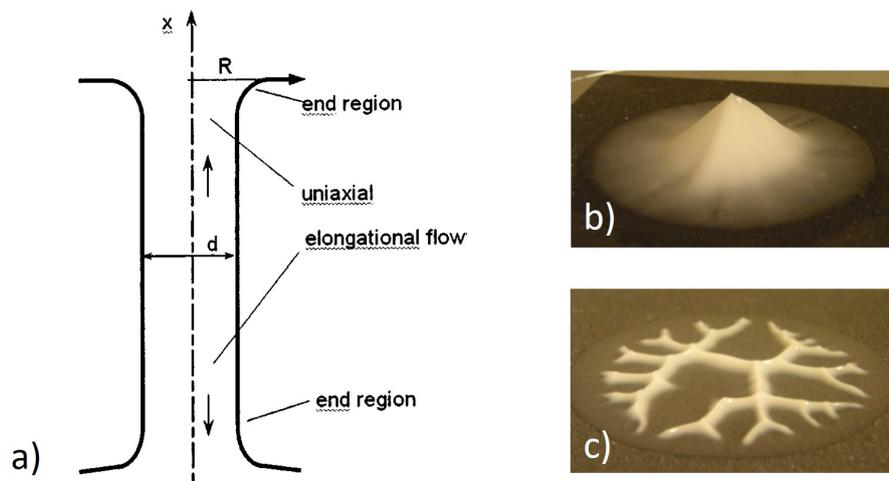


FIGURE 1.8 – Aspects de filaments étirés : a) schéma d'un filament cylindrique fin en cours d'élongation (YARIN et al. 2004), b) échantillon de fluide à seuil s'étant séparé en formant un cône et c) en formant des digitations dues à une instabilité de Saffman-Taylor (BARRAL et al. 2010)

#### 1.3.4.3 Expériences sur des fluides à seuil et propositions pour l'écart au modèle de HB 3D

Cette section montre des études visant à déterminer expérimentalement le seuil en élongation de fluides à seuil. Pour alléger la lecture, on note le rapport entre le seuil en élongation et le seuil en cisaillement  $\epsilon$ .

Des expériences à partir de la machine utilisée pour des polymères (CaBER pour Capillary Break-up Extensional Rheometry) ont d'abord été faites. Pour les fluides à seuil, au cours de la traction du filament, le rayon de courbure induit rapidement des forces supplémentaires (NIEDZWIEDZ, BUGGISCH et WILLENBACHER 2010). De ce fait, en se plaçant dans les conditions pour que la pression de Laplace liée à la courbure du filament soit la pression motrice des déformations, il est possible d'arriver à des courbures telles que la pression de Laplace dépasse le seuil, et donc qu'il y ait rupture du filament. De cette manière, il est possible d'estimer une contrainte seuil en élongation. En faisant cela, NIEDZWIEDZ, BUGGISCH et WILLENBACHER 2010 trouvent un rapport  $\epsilon = 2.8$  pour des émulsions. MARTINIE, BUGGISCH et WILLENBACHER 2013 complètent cette expérience en remarquant que la vitesse d'éloignement des deux plaques est critique. L'idée est de comparer un temps caractéristique d'une expérience de séparation (donné par la vitesse d'éloignement) à un temps caractéristique de relaxation du matériau. Le rapport du temps de relaxation sur le temps de l'expérience est le nombre de Deborah, noté  $De$ . Aux vitesses d'éloignement élevées ( $De \gg 1$ ), les vitesses de déformations sont grandes, le filament se rapproche d'un comportement Newtonien et le rapport  $\epsilon$  vaut environ 3. Il faut se mettre dans des conditions expérimentales telles que le temps de relaxation soit égal au temps de l'expérience ( $De = 1$ ) pour avoir accès au seuil en élongation. Dans ce cas MARTINIE, BUGGISCH et WILLENBACHER 2013 trouvent le rapport  $\epsilon = \sqrt{3}$  de Von Mises (figure 1.9).

Une seconde expérience consiste à extruder une goutte de fluide à seuil à travers un capillaire et à mesurer les forces en jeu quand elle se détache (figure 1.10). GERMAN et BERTOLA 2010 comparent la pression de Laplace au niveau du pincement (section de rayon minimum à un temps donné) à la valeur du seuil en cisaillement. Si le seuil est supérieur à la pression de Laplace (toujours constante égale à 15Pa pour leur diamètre de capillaire de 1.27mm), la rupture est pilotée par la gravité, et s'il est en dessous, elle est pilotée par la capillarité. Lorsque la gravité pilote la rupture, le seuil en élongation est donné par la masse de goutte divisée par la surface du pincement au moment où il dévie de sa décroissance jusque là linéaire, et suit le critère de Von Mises ( $\epsilon = \sqrt{3}$ ).

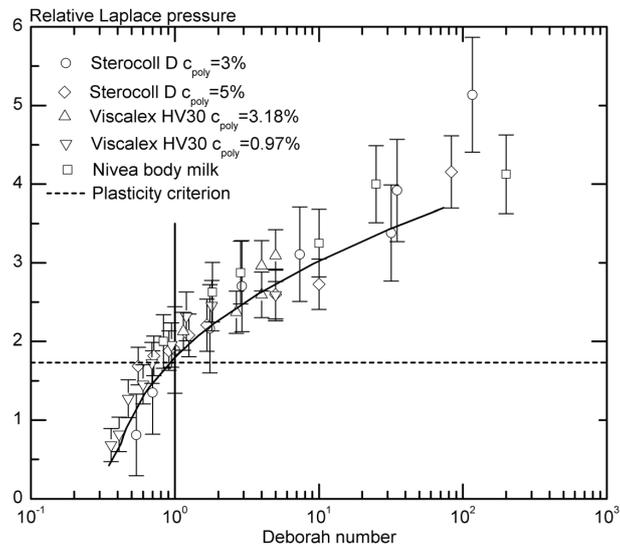


FIGURE 1.9 – Seuil en élongation en fonction du nombre de Deborah (MARTINIE, BUGGISCH et WILLENBACHER 2013)

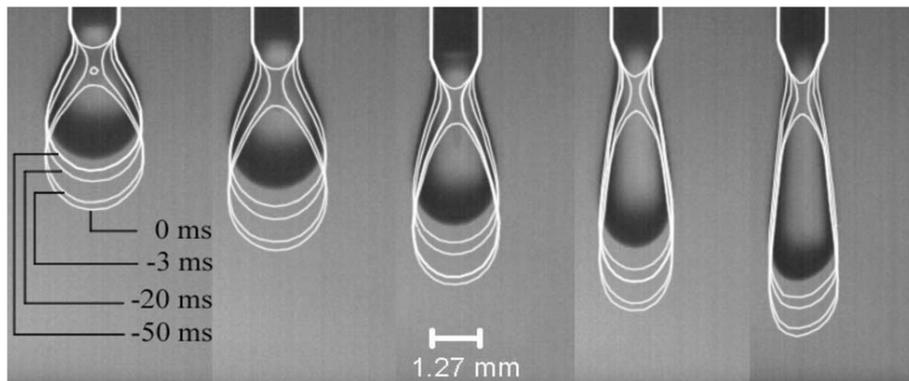


FIGURE 1.10 – Gouttes de gel à cheveux plus ou moins dilué (de gauche à droite)(GERMAN et BERTOLA 2010)

Si le diamètre du filament est augmenté, la pression de Laplace est diminuée. Dans un travail antérieur à ceux décrits plus haut, COUSSOT et GAULARD 2005 s'étaient placés dans les bonnes conditions pour étudier une rupture gravitaire (seuil supérieur à 30Pa, diamètre de buse de 6mm). Dans leur travail, le modèle 3D de Herschel-Bulkley est dérivé pour décrire le comportement d'un fluide à seuil en élongation (équation 1.21). Coussot et Gaulard supposent qu'il n'y a pas de déformation avant le dépassement du seuil. Alors, le filament commence à s'écouler pour une longueur extrudée critique telle que le seuil est dépassé dans la section juste sous la buse (où la contrainte gravitaire est la plus forte). Dans ce travail, une idée était de prédire la masse finale de la goutte séparée, en considérant que pendant que le filament se sépare (ce temps augmente avec la visco-

sité du matériau), du matériau peut s'ajouter au filament (cette quantité augmente avec la vitesse d'extrusion). Expérimentalement, la masse n'augmente pas beaucoup avec la vitesse, à part pour le gel de carbopol. La masse des gouttes de mayonnaise et de ketchup est proche de celle attendue à vitesse très lente (sans addition de matière au cours de la rupture) à condition de s'attendre à un écoulement qui suit un critère de Von Mises appliqué au seuil en cisaillement statique (pour la mesure de ce seuil, les fluides ne sont pas laissés au repos pour éviter d'ajouter des effets de thixotropie, et la rampe dure 1min). Les auteurs concluent que "parmi les applications, il est inutile d'augmenter le débit pour éviter le goutte à goutte quand on se sert de ketchup" (COUSSOT et GAULARD 2005). BALMFORTH, DUBASH et SLIM 2010 ont complété ce travail en incluant des effets de tension de surface et d'inertie, qui peuvent avoir des rôles dans la dynamique de rupture, notamment sur la fin de la rupture, quand les déformations sont grandes et que le rayon se réduit rapidement. Ils comparent les profils successifs théoriques et expérimentaux et trouvent des profils similaires pour leur gel de carbopol (en accord avec COUSSOT et GAULARD 2005), mais pas pour leur suspension de kaolin. Dans leur conclusion, ils proposent de récupérer des valeurs de  $K$ ,  $n$  et  $\tau_c$  à partir d'une expression théorique du volume final. Cependant, cette tentative pour récupérer des propriétés rhéologiques repose sur une connaissance a priori de la forme de la loi de comportement et ne fournit pas une mesure directe des propriétés d'élongation. C'est toutefois une première tentative pour construire une courbe d'écoulement en élongation.

Une limitation commune à toutes ces expériences est que l'écoulement est élongationnel uniquement si le filament reste cylindrique (MCKINLEY et TRIPATHI 2000). Les polymères ou les métaux restent bien cylindriques, ce qui permet de mesurer leurs seuils. En revanche, pour les fluides à seuil, une courbure importante se développe. Dans certaines des expériences précédentes, la courbure avait été prise en compte pour ajouter le terme de pression de Laplace à la mesure de la contrainte sur le filament, mais en faisant toujours l'hypothèse que le filament est simplement étiré. Il avait alors été remarqué que s'il y avait un glissement parfait d'un cylindre en étirement entre les deux plaques, l'écoulement serait élongationnel (NIEDZWIEDZ, BUGGISCH et WILLENBACHER 2010). ZHANG et al. 2018, en utilisant des plaques de silicium permettant un excellent glissement, ont pu conserver un filament quasiment cylindrique pendant un essai de traction (figure 1.11, le critère est que la pression de Laplace reste faible devant le seuil). De cette manière, l'hypothèse de l'élongation uniaxiale est robuste jusqu'à des allongements importants, et est valable sur toute la hauteur de l'échantillon. Zhang et al. trouvent un rapport  $\epsilon = 1.5 * \sqrt{3}$  pour le carbopol et une émulsion, et  $\epsilon = 2.5 * \sqrt{3}$  pour la mayonnaise et le ketchup. Comme NIEDZWIEDZ, BUGGISCH et WILLENBACHER 2010 avant eux, ils suggèrent de considérer le troisième invariant du tenseur des contraintes dans le critère

de dépassement du seuil.

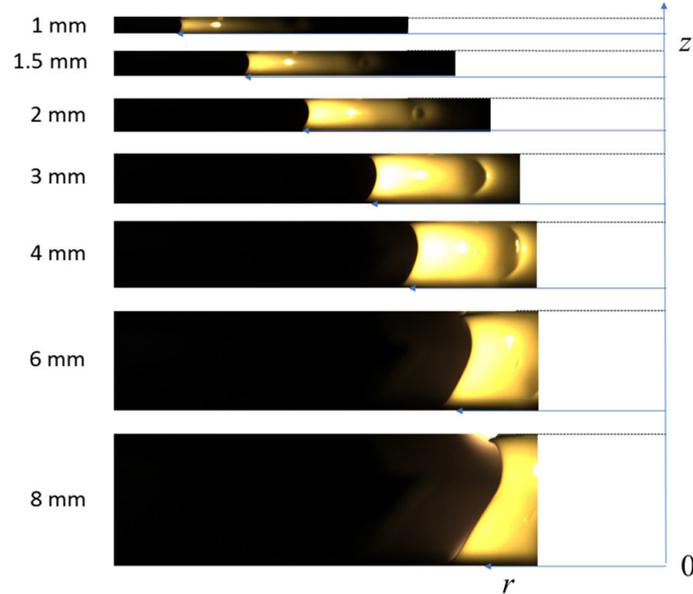


FIGURE 1.11 – Éloignement de plaques de silicium permettant, grâce au glissement aux parois des plaques, de conserver un échantillon (en jaune) cylindrique (ZHANG et al. 2018)

#### 1.3.4.4 Conclusion sur ces expériences et développements de nouvelles expériences ou analyses

Dans la section 1.3.4.3, on a vu plusieurs idées pour mesurer des propriétés élongationnelles des fluides à seuil. Dans ces caractérisations, le but est de déterminer le démarrage de l'écoulement pour en déduire le seuil. En étudiant l'éloignement de plaques parallèles ainsi que l'extrusion de filaments, les auteurs et autrices essaient de prédire quelle sera la dynamique de la rupture, et proposent même l'idée de construire une courbe d'écoulement à partir des données d'expérience. Une difficulté est que les différentes études, pourtant bien justifiées, trouvent des résultats relativement différents pour la valeur du seuil en élongation, variant entre  $\sqrt{3} * \tau_c$  comme prédit par le critère de Von Mises (et le modèle de Herschel-Bulkley 3D) et  $3\sqrt{3}$ . Cette valeur maximale est plus grande que pour un fluide Newtonien (voir notamment les résultats asymptotiques de MARTINIE, BUGGISCH et WILLENBACHER 2013 en figure 1.9). Pour justifier ces différences, on trouve à plusieurs reprises dans ces articles l'idée que l'hypothèse du rapport d'aspect important pouvait être trop forte. Une conséquence est que l'écoulement n'est pas forcément une élongation pure uniaxiale. Il est aussi proposé que le critère plastique

de Von Mises n'est pas forcément le plus réaliste, et qu'un critère tenant compte du 3ème invariant du tenseur des contraintes pourrait être plus pertinent.

Dans cette section, nous ajoutons à la discussion une expérience supplémentaire qui a visé à trouver des propriétés d'élongation avec une approche assez différente des précédentes, et nous décrivons une étude qui permet d'affiner la compréhension des écoulements des expériences précédentes.

Dans l'étude de VARCHANIS et al. 2020, une cellule de rhéométrie appelée OSCER permet un écoulement 2D élongationnel au centre de la géométrie. Par vélocimétrie par imagerie de particules (PIV), il est possible de suivre les déformations au cours de l'écoulement. Au vu de l'écart des expériences précédentes au modèle de HB 3D, les auteurs cherchent à voir si le changement de propriétés rhéologiques d'un matériau a un impact sur l'écoulement élongationnel. N'en voyant pas, ils concluent que la déviation des résultats par rapport au critère de Von Mises n'est pas liée à une mauvaise compréhension de la dynamique élongationnelle, mais suggèrent que c'est en fait la mesure du seuil en cisaillement qui pose problème. La déformation élastique solide induirait des contraintes normales en cisaillement dont la contribution au critère de Von Mises augmente avec la déformation seuil. Ainsi, plus la déformation seuil d'un matériau est grande, plus la contribution de  $\tau_{xy}$  pour dépasser le critère de Von Mises baisse (figure 1.12). Une force de cette étude est que les conclusions sont faites sur un écoulement qui est assuré d'être élongationnel et est permanent, ce qui n'était pas le cas des études de la section 1.3.4.3.

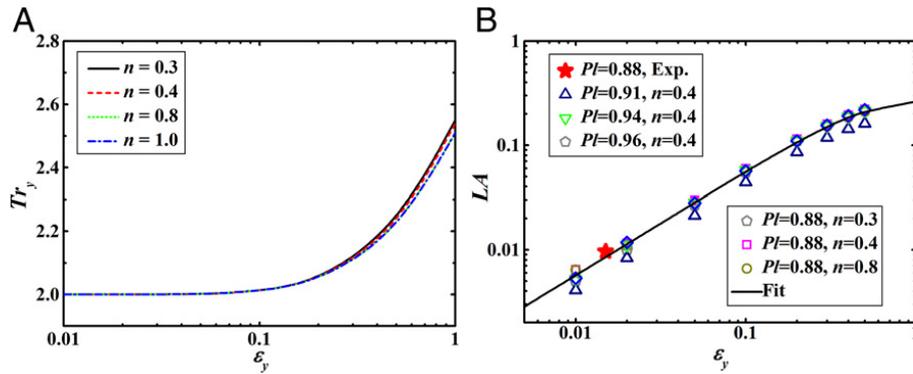


FIGURE 1.12 – A) Évolution de  $\epsilon$  avec la déformation seuil (en cisaillement). Cette étude se fait sur des écoulements plans, ce qui implique que  $\epsilon$  (noté  $Tr_y$  pour Trouton) attendu du critère de Von Mises vaut 2 et non plus  $\sqrt{3}$  comme en 3D. B) En pratique, les auteurs obtiennent la déformation seuil en mesurant l'asymétrie de leur écoulement (représentée par un paramètre  $LA$ ) (VARCHANIS et al. 2020)

Enfin, le travail numérique de MOSCHOPOULOS et al. 2020 apporte des éclairages sur la séparation d'un filament dans l'éloignement de deux plaques rugueuses. Les implications de l'hypothèse du filament fin qui a systématiquement été faite dans les études précédentes pour supprimer les contributions du cisaillement (cadre quasi 1D) sont étudiées. Les résultats du cadre quasi 1D sont comparés avec une résolution numérique sans cette hypothèse (cadre 2D). En étudiant en particulier la localisation des domaines liquide et solide dans le filament, les auteurs montrent que le cas 1D, en oubliant une contribution du cisaillement, donne une solution qui localise trop la rupture au niveau du pincement. Près du pincement, l'écoulement est effectivement quasiment purement élongationnel, mais dans les zones au-dessus et en-dessous, le cisaillement contribue largement aux déformations (voir figure 1.13). Cette étude, en remettant en cause l'hypothèse d'un filament fin, fournit des motivations pour repenser les expériences d'étirement, qu'elles soient gravitaires ou par éloignement de plaques.

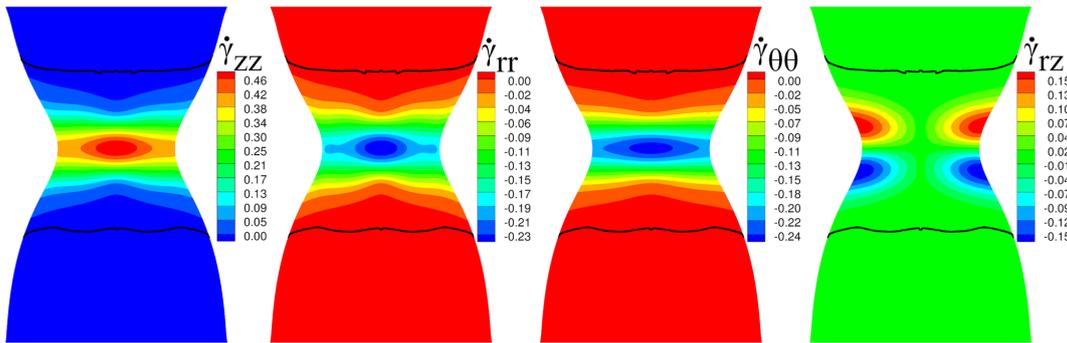


FIGURE 1.13 – Champs des composantes du tenseur des taux de déformations au cours de l'éloignement de plaques (MOSCHOPOULOS et al. 2020)

### Conclusion de l'état de l'art et plan de la thèse

Ce travail bibliographique nous permet de mettre au point une stratégie pour aborder la problématique du dépôt de fluides à seuil. Plusieurs méthodes d'impression par extrusion existent en fonction de la hauteur d'impression et du type de buse. Celle consistant à imprimer un filament depuis une hauteur supérieure au diamètre avec une buse cylindrique semble un peu plus compliquée que les autres à mettre en place car elle nécessite de comprendre correctement les déformations pour maîtriser la forme du dépôt. Pour essayer de mieux comprendre ces formes de dépôts pour des fluides à seuil, nous avons fait une étude bibliographique des formes de dépôts dans des conditions d'impression similaires mais pour des solides élastiques et des fluides visqueux. Pour ces matériaux, les équilibres des forces et des moments permettent de dériver des systèmes d'équations

qui sont résolus pour décrire la dynamique des filaments, ce qui permet notamment de décrire les motifs de dépôts de ces matériaux simples. Ces études ainsi que la suite de la bibliographie montrent que le comportement en élongation doit être pris en compte pour décrire les dépôts, qu'ils soient pour des matériaux simples ou des fluides à seuil. Nous avons donc fait un bilan des travaux de caractérisation des fluides à seuil en élongation.

De ce bilan, il nous apparaît le besoin de proposer une nouvelle méthode de caractérisation des fluides à seuil. Cette méthode doit être adaptée aux fluides à seuil de l'impression 3D, qui ont généralement un seuil en sortie de buse de 100 à 1000Pa, et doit tenir compte des difficultés rencontrées dans les études de la bibliographie. Pour cela, nous caractérisons d'abord en cisaillement, donc dans le cadre d'un écoulement bien connu et maîtrisé, divers fluides à seuil (gel, émulsion, suspension de kaolin et suspension de ciment). Nous développons la méthode de caractérisation du comportement en élongation dans les chapitres 3 et 4. Cette méthode consiste à extruder un filament de fluide à seuil et à étudier sa rupture par gravité, mais sans faire l'hypothèse que le filament est fin, qui forçait à considérer que l'élongation était pure uniaxiale dans tout le filament. Dans le dernier chapitre, nous étudions des dépôts de fluides à seuil de manière expérimentale. En faisant varier un grand nombre de paramètres, nous montrons l'influence de chacun des paramètres et nous construisons une cartographie avec des paramètres adimensionnels décrivant les conditions aux limites. En faisant des liens avec les propriétés d'élongation des fluides étudiés, et avec les études sur des matériaux simples, nous développons une meilleure compréhension des formes des dépôts des fluides à seuil.

# Chapitre 2

## Matériel et méthodes

Dans ce chapitre, nous expliquons la préparation des matériaux étudiés dans la thèse, puis nous faisons une étude de leurs comportements en cisaillement. La dernière section présente les instruments utilisés pour les expériences d'extrusions et de dépôts de ces matériaux.

### 2.1 Préparation des matériaux

#### Gel de carbopol

Le gel de carbopol est un gel commercial (gel coiffant Vivelle dop). Son seuil est conféré par des polymères (acides polyacryliques) présents dans le gel sous forme de pelotes qui emprisonnent la matrice fluide (eau essentiellement). La quantité de polymères est assez grande pour qu'ils s'enchevêtrent les uns dans les autres, et créent une structure coincée. Le gel peut s'écouler quand un effort suffisamment important est appliqué pour désenchevêtrer les chaînes de polymères (LIDON 2016).

#### Emulsion

L'émulsion préparée est une émulsion directe d'huile de dodécane dans de l'eau telle que l'huile de dodécane occupe 88% du volume total ( $\phi = 0.88$ ). Pour préparer 900mL de cette émulsion à 88%, on prépare un premier bécher avec 108g d'eau dans lequel sont ajoutés 3g de tensioactif TTAB. Dans un second bécher, on verse 594g d'huile de dodécane (densité = 0.75). L'émulsification se fait avec une machine Silverson, qui est composée d'un rotor tournant jusqu'à 7000tr/min et dont la géométrie est spécialement faite pour créer des gouttelettes de taille constante. Pour faire l'émulsification, on transvase un peu (environ 100mL) d'huile dans le bécher d'eau, dans lequel on immerge

entièrement le rotor qui tourne à une vitesse de 500tr/min. Lorsque les 100mL d'huile et l'eau forment une même phase et non plus deux phases séparées, un peu d'huile est rajoutée, et, de la même manière qu'avant, on attend que cette phase huileuse rejoigne la phase eau+huile. On procède ainsi jusqu'à avoir introduit toute l'huile. L'émulsion doit progressivement s'épaissir à mesure que la concentration en huile augmente. En particulier, lorsque  $\phi$  devient supérieur à 0.64, la concentration est supérieure à la concentration d'un empilement maximal de sphères dures. Les gouttelettes, qui peuvent se déformer, sont donc comprimées les unes par les autres, ce qui donne une tenue importante à l'émulsion. On parle d'émulsion concentrée. Lorsque toute l'huile est ajoutée, la vitesse du rotor est augmentée par paliers de 500tr/min, jusqu'à 5000tr/min. A chaque augmentation de palier, on fait se déplacer doucement le rotor de fond du bécher vers le haut, de manière à cisailer toute l'émulsion. Lorsque le rotor s'approche du haut du bécher, il faut faire attention à ne pas introduire d'air dans l'émulsion, car les bulles d'air resteraient emprisonnées à cause du seuil qui contraint leur déplacement. Elles changeraient sa structure, donc sa densité et son comportement. A 5000tr/min, l'ensemble de l'huile est passée sous forme de gouttelettes de tailles semblables, d'environ  $2\mu\text{m}$  (DUCLOUÉ 2014). L'émulsion est alors un fluide à seuil, avec une densité de 0.78.

### Suspension de kaolin

La suspension de kaolin est une suspension concentrée de particules de kaolin dans de l'eau. Le kaolin est une argile qui se présente sous forme de poudre. La densité de 2.6 indiquée par le fournisseur (Imerys, kaolin Speswhite) a été confirmée par un essai au pycnomètre. Les particules de kaolin sont des plaquettes de quelques microns de largeur et longueur, et de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur, organisées sous forme d'amas de plaquettes les unes sur les autres pour notre valeur de pH de 7 (THENG 2012). Au vu de leurs dimensions, nous considérons qu'elles sont majoritairement non colloïdales, c'est-à-dire qu'elles développent entre elles essentiellement des interactions attractives de Van der Waals, auxquelles ne s'ajoutent pas (ou dans une faible mesure) les forces se développant généralement entre particules inférieures au micron, notamment des forces électrostatiques répulsives ou de l'agitation thermique.

Les suspensions préparées ont des concentrations volumiques variant entre 13% et 44%. Pour préparer une suspension à une concentration donnée, on prélève d'abord la quantité souhaitée de poudre de kaolin, on lui ajoute la bonne quantité d'eau déionisée, puis on mélange au malaxeur pendant 30s à 50tr/min, puis 2min à 150tr/min. Un temps de malaxage trop court conduit généralement à des hétérogénéités (flocs) de la pâte. Par la suite, si la suspension est mal mélangée, les courbes d'écoulement obtenues en

rhéométrie avant et après un essai d'extrusion seront différentes, car l'extrusion aura comme prolongé le malaxage.

### Suspension de ciment

La pâte de ciment est aussi une suspension, de particules de ciment dans de l'eau. On décrit sa concentration dans le cadre usuel des cimentiers, qui utilisent le rapport massique E/C entre l'eau et le ciment pour caractériser la suspension de ciment. Dans cette thèse, E/C varie entre 0.35 et 0.5. Le ciment utilisé (CEM1 Brest) a une densité de 3.1. Les concentrations volumiques en ciment varient ainsi entre  $\phi = 0.39$  et  $\phi = 0.48$ .

Pour préparer 2kg de pâte de ciment à E/C=0.5, on pèse 1kg de ciment, puis on lui ajoute 1kg d'eau déionisée. L'ensemble est malaxé pendant 30s à 50tr/min puis 45s à 150tr/min. Les premiers hydrates du ciment, essentiellement de l'ettringite, précipitent pendant les 15 premières minutes d'hydratation (FLATT et HOUST 2001). On choisit ici de limiter l'effet de ces hydrates en laissant la suspension les développer pendant 20min après le premier malaxage, puis en malaxant de nouveau pendant 45s à 150tr/min. On retient tout de même que dans le cas où on étudierait les déformations très faibles, notre méthode de préparation nous ferait manquer un phénomène non négligeable (ROUSSEL, BESSAIES-BEY et al. 2019). Les seconds produits d'hydratation (principalement des ponts CSH) ont une source quasi infinie, ils peuvent réapparaître après avoir été détruits (ROUSSEL, OVARLEZ et al. 2012). Le ciment va donc continuer de se structurer dans les minutes après le deuxième malaxage. Les temporalités des expériences doivent tenir compte de ce caractère thixotrope.

Nous avons préparé une deuxième pâte de ciment comportant de l'HEMC, un polymère ayant pour rôle de stabiliser la suspension de ciment en limitant les effets de ségrégation, et qui augmente aussi le seuil (BRUMAUD, BESSAIES-BEY et al. 2013, BRUMAUD, BAUMANN et al. 2014). L'HEMC, qui nous est fournie sous forme de poudre, est d'abord mélangée à de l'eau pour faire une solution à 1,2g/L. Il est nécessaire de laisser agiter ce mélange plusieurs heures sous agitation magnétique pour casser les amas d'HEMC. Pour faire 2kg de ciment à E/C=0.5 additionné d'HEMC, on pèse 1kg de ciment, et on lui ajoute cette fois seulement 500g d'eau déionisée avant de faire un premier malaxage. La pâte est mise à reposer 20min. Lorsque les 20min de repos sont écoulées, on rajoute 500g de la solution d'HEMC, de manière à ce que la concentration totale en HEMC dans l'eau soit de 0.6g/L. La pâte est de nouveau malaxée pendant 30s à 50tr/min puis 45s à 150tr/min.

## 2.2 Rhéométrie en cisaillement du carbopol et de l'émulsion

### 2.2.1 Gel de carbopol

On cherche à connaître le comportement en cisaillement du gel de carbopol. Pour déterminer son seuil d'écoulement et son comportement dans le domaine liquide, on impose une rampe de contraintes montante directement suivie d'une rampe descendante (40Pa-300Pa-40Pa). Chaque rampe dure 120s. On utilise ici une géométrie Couette striée avec un entrefer de 4.5mm. Les résultats sont montrés en termes de contraintes de cisaillement vs taux de déformation sur la figure 2.1. La courbe descendante (carrés bleus vides) est bien superposée à la courbe montante (carrés bleus pleins). Cela montre que les effets de bords éventuels sont évités (pas de creusement dans la montée), et que le carbopol garde le même comportement dans le cas où il est au repos avant d'être cisailé (avant la montée) et dans le cas où il est fortement cisailé avant d'être de nouveau cisailé (avant la descente). Ceci est un indicateur de la non-thixotropie du carbopol. Pour d'autres matériaux où les courbes de montée et descente ne se superposent pas (le ciment par exemple), on peut identifier un seuil de mise en écoulement en montée et un seuil différent d'arrêt d'écoulement en descente.

Par ailleurs, on note que la montée aux faibles contraintes (entre 40 et 75Pa) fait apparaître un taux de déformation non nul, alors que la contrainte imposée est inférieure au seuil. Le temps de mesure entre deux points est de 4s, pendant lequel la contrainte augmente de quelques pascals. Pour le carbopol, la déformation solide augmente de l'ordre du pourcent pour cette augmentation de contrainte (voir les données de fluages sur la figure 2.2). Un taux de déformation "parasite" dû à la mesure d'une déformation solide de quelques pourmille est donc mesuré, et correspond en fait aux quelques carrés pleins bleus sous 75Pa.

La courbe donnée par la rampe de contrainte descendante peut être fittée par un modèle de Heschel-Bulkley. Le carbopol est bien décrit dans cet essai en cisaillement par l'équation  $\tau = \tau_c + K * \dot{\gamma}^n$  avec  $\tau_c = 103Pa$ ,  $K = 50Pa.s^n$  et  $n = 0.39$ .

On complète la caractérisation du comportement du carbopol avec des essais de fluage, qui consistent à fixer une contrainte et à mesurer les déformations au cours du temps. Les essais de fluage sont faits avec la même géométrie Couette striée que les rampes de contraintes, et sont présentés sur la figure 2.2. On distingue deux régimes. Lorsque le carbopol est soumis à des contraintes inférieures ou égales à 105Pa (courbes noires), la déformation atteinte après 2 secondes de fluage n'évolue plus, car le carbopol

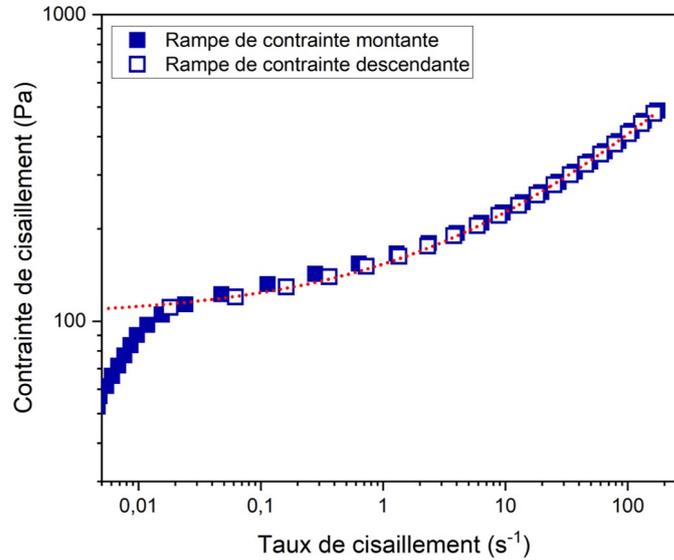


FIGURE 2.1 – Rampe de contrainte montante et descendante d'un gel de carbopol dans une géométrie Couette. La courbe descendante est fittée par un modèle de Herschel-Bulkley avec les données  $\tau_c = 103Pa$ ,  $K = 50Pa.s^n$  et  $n = 0.39$

est déformé dans son régime solide. En regardant plus précisément les courbes près du seuil, on peut voir que la déformation continue d'évoluer légèrement et traduit un fluage solide. Mais dans ce cas, les déformations restent finies, contrairement aux déformations du carbopol lorsque la contrainte imposée est supérieure ou égale à 120Pa (courbes bleues). Dans cette seconde situation, les déformations évoluent continuellement avec le temps, le carbopol est en train de s'écouler. La pente constante égale à 1, atteinte très rapidement pour les fluages aux contraintes supérieures à 150Pa, met un certain temps à être atteinte aux contraintes plus proches du seuil, ce qui veut dire que le carbopol met un certain temps à atteindre un régime d'écoulement permanent. Finalement, ces données de fluages donnent un seuil de contrainte à la limite entre les deux régimes entre 105 et 120Pa.

Les données de fluage du régime liquide sont réécrites en termes de contrainte vs taux de cisaillement sur la figure 2.3. A une contrainte imposée, lorsque le taux de cisaillement cesse de varier, c'est a priori que l'écoulement est permanent. On peut alors construire une courbe d'écoulement contrainte vs taux de cisaillement à partir des données de fluage, qui ont l'avantage d'avoir laissé au matériau le temps d'atteindre

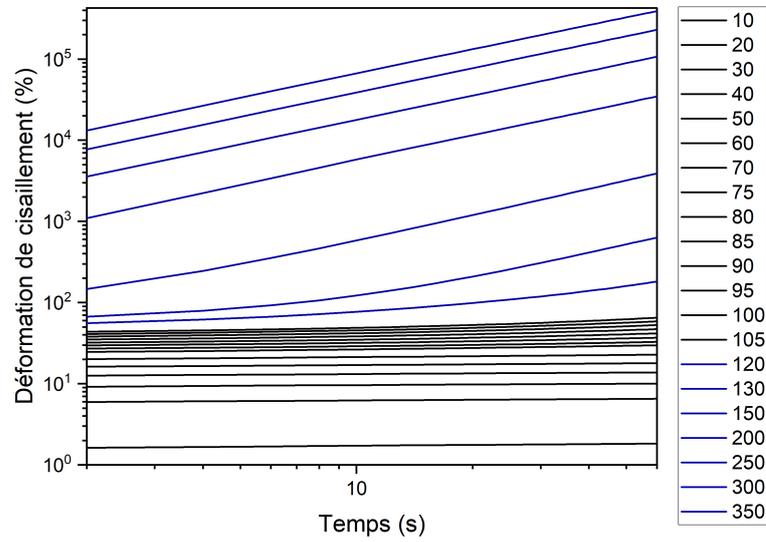


FIGURE 2.2 – Déformations vs temps par des essais de fluage du carbopol en géométrie Couette

un régime stable. Ces données se superposent très bien aux données des rampes de contrainte construites précédemment (figure 2.4).

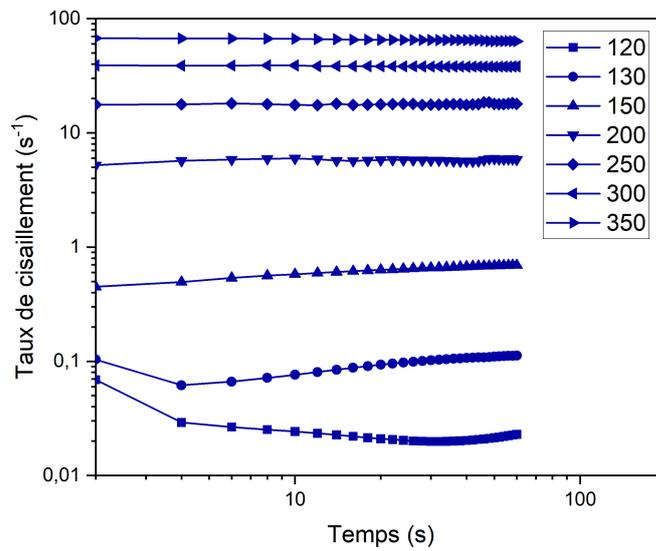


FIGURE 2.3 – Taux de cisaillement vs temps par des essais de fluage du carbopol pour des contraintes supérieures au seuil

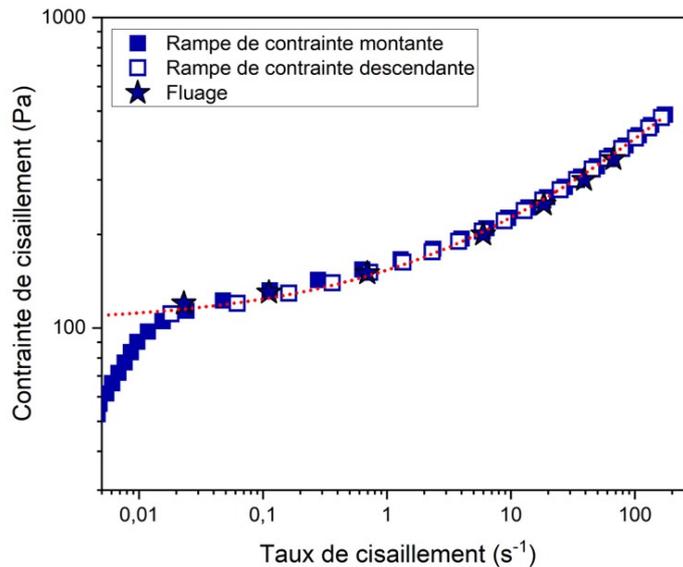


FIGURE 2.4 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montante et descendante (carrés) et fluage (étoiles) d'un gel de carbopol dans une géométrie Couette

Le comportement solide peut être décrit en termes de contraintes vs déformations, à partir des données de fluage (figure 2.5). Pour chaque valeur de contrainte, la valeur de la déformation est relevée après une seconde de fluage. De cette manière, on attend assez longtemps pour qu'un phénomène d'oscillations qui a lieu aux premiers temps disparaisse, et pas trop longtemps pour éviter des effets de fluage solide relevés au-dessus. La courbe contrainte vs déformations (triangles bleus) est linéaire avec un léger écartement à la linéarité près du seuil. L'équation  $y = 3x$ , qui tombe assez bien sur les données, signifie, dans l'hypothèse où le carbopol est purement élastique dans son domaine solide, que son module élastique vaut 300Pa. Un essai additionnel d'étude de la réponse à un signal sinusoïdal nous a fourni une valeur du module élastique de 373Pa, donc proche.

### 2.2.2 Emulsion

L'émulsion est stable pendant quelques semaines. Après ce temps, les phases aqueuse et huileuse ont tendance à se séparer, et une couche d'huile apparaît à la surface de l'émulsion. Dans une géométrie Couette striée avec un entrefer de 1mm, on impose une rampe de contraintes montante jusqu'à 110Pa, puis une rampe décroissante (figure 2.7). Les données de la descente (carrés verts vides) sont très proches de la montée (carrés

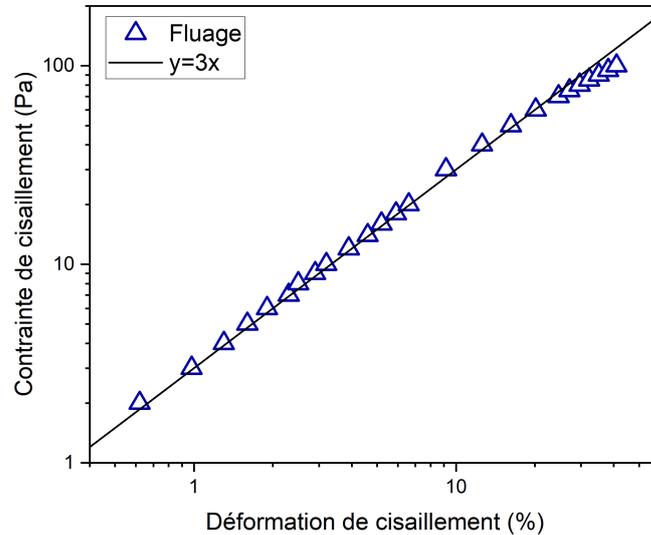


FIGURE 2.5 – Contrainte vs déformation par des essais de fluage en-dessous du seuil du carbopol

verts pleins), et sont fittées par l'équation  $\tau = \tau_c + K * \dot{\gamma}^n$  avec  $\tau_c = 56Pa$ ,  $K = 8Pa.s^n$  et  $n = 0.38$ . Des essais de fluage complémentaires (données de l'essai sur la figure 2.6 et données au-dessus du seuil sur la figure 2.7 (étoiles vertes)) fournissent des valeurs proches de celles des rampes de contrainte et confirment que le seuil vaut entre 50 et 60Pa.

## 2.3 Rhéométrie en cisaillement du kaolin

### 2.3.1 Effets de bord

L'essai de rampes de contraintes montante puis descendante donne une courbe descendante située sous la courbe montante (figure 2.8, carrés). Certains fluides à seuil, qualifiés de thixotropes, peuvent se structurer dans le temps, et fournissent ainsi un seuil de mise en écoulement (seuil statique) supérieur au seuil d'arrêt d'écoulement (seuil dynamique). Le kaolin a une microstructure qui est formée d'amas de particules de kaolinite reliées entre elles par des liaisons de Van der Waals, qui ne se renforcent pas avec le temps. De plus, si on impose de nouveau une courbe montante derrière la courbe descendante, même après un temps de repos, la nouvelle montée se superpose cette fois sur la courbe descendante (figure 2.8, triangles). Le fort cisaillement qui a eu lieu pendant la première montée a donc induit un changement non réversible sur la mesure de la courbe

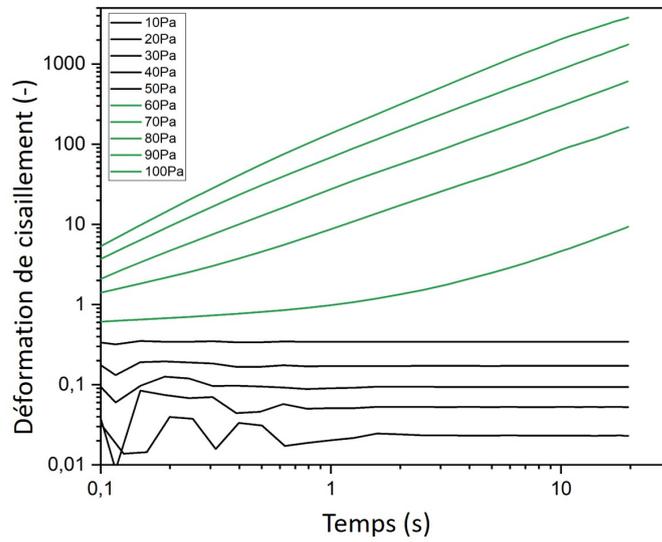


FIGURE 2.6 – Déformations vs temps par des essais de fluage de l’émulsion en géométrie Couette

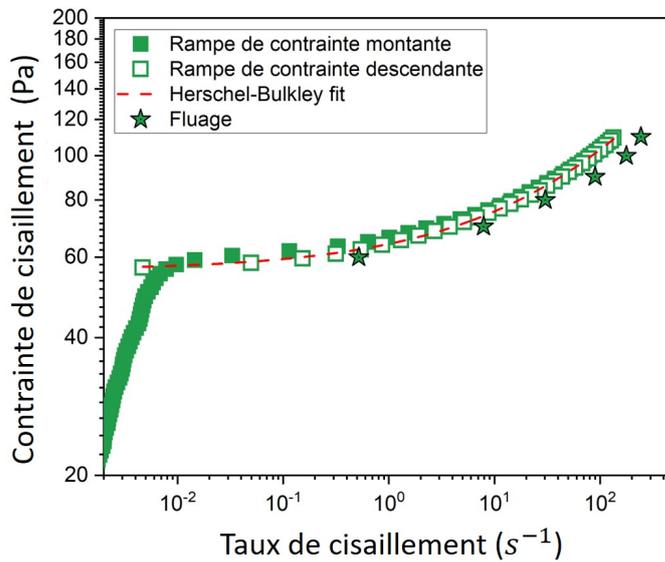


FIGURE 2.7 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montante et descendante (carrés) et fluage (étoiles) de l’émulsion dans une géométrie Couette

d'écoulement.

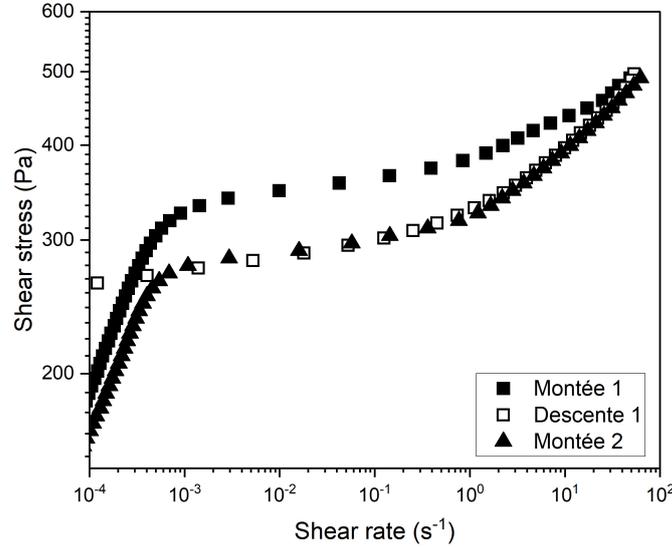


FIGURE 2.8 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montante, descendante puis remontante du kaolin dans une géométrie Couette

Les plaquettes de kaolinite pourraient s'aligner dans la direction de l'écoulement. L'alignement de particules dans une suspension peut induire une modification des propriétés d'écoulement, entraînant notamment une diminution de la viscosité (BROWN et al. 2000). Ici, on caractérise le kaolin en cisaillement pur dans le but d'avoir des caractérisations de référence pour aborder des écoulements plus complexes mis en œuvres dans des procédés d'impression 3D. Il est donc important de connaître et maîtriser l'état du kaolin dans un écoulement référence en cisaillement, et donc de comprendre s'il y a alignement. L'alignement est bien observé dans le cas de suspensions peu concentrées, par exemple par la technique de Dynamic Light Scattering (BROWN et al. 2000). Mais cette technique nécessite que la suspension soit concentrée à moins de quelques pourcents.

Nous avons au laboratoire des appareils de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) du proton d'hydrogène qui vont fournir une première analyse de l'éventuel alignement. Dans ces appareils, un champ magnétique constant  $B_0$  impose une orientation des spins des protons des atomes d'hydrogène dans la direction du champ. Un signal radio à la fréquence de résonance des protons, envoyé perpendiculairement au champ  $B_0$  permet de modifier l'orientation des spins. Un champ  $B_1$  perpendiculaire à  $B_0$  est alors créé.

Lorsque ce signal radio arrête d'être émis, les spins reviennent à leur orientation initiale selon un mouvement de précession dont la trajectoire et la vitesse renseignent sur l'environnement des protons des hydrogènes de l'échantillon.

La RMN d'une suspension de kaolin fait résonner l'hydrogène de l'eau. On peut considérer le kaolin comme un matériau poreux, avec une structure en forme de château de cartes (les plaquettes de kaolinite). Les pores construits par cette structure sont remplis d'eau. Or, l'eau contenue dans un matériau poreux va relaxer avec un temps caractéristique qui varie avec la taille des pores. Nous faisons une série de tests dans lesquels une suspension de kaolin est précisailée ou pas. L'analyse des signaux RMN d'un échantillon de kaolin non précisailé fournit un unique pic, donc un unique temps de relaxation  $T_1 = 27ms$  (figure 2.9). On compare ensuite les signaux de ce kaolin non précisailé au même kaolin en court de cisaillement fort (à 1600tr/min), puis au kaolin après cisaillement. Tous donnent le même signal, avec un unique pic à 27ms. Le cisaillement n'a pas élargi ou aminci ce pic, ni ne l'a déplacé. Si les plaquettes s'étaient alignées, on aurait attendu un déplacement du pic vers la gauche avec la réduction de l'épaisseur d'un pore, et/ou un amincissement du pic à cause d'une distribution plus resserrée de l'épaisseur des pores. Ces résultats nous font donc penser que la structure de la suspension de kaolin est restée la même avant et après le cisaillement de la suspension.

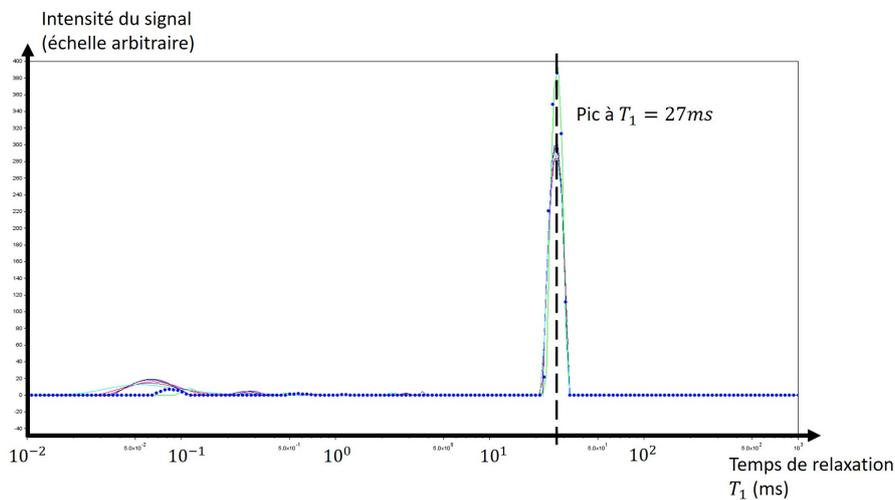


FIGURE 2.9 – Intensité du signal RMN du kaolin montrant un temps de relaxation  $T_1 = 27ms$  commun à tous nos essais

On suggère plutôt qu'un creusement aux bords des géométries est à l'origine de la non-superposition des courbes d'écoulement en montée et en descente. Ce creusement ap-

paraît de manière importante dans la géométrie Couette, au bord des parois du cylindre intérieur, et de manière moins prononcée mais visible dans une géométrie plan-plan (voir figure 2.10). Le creusement implique une sous-estimation de la contrainte réelle appliquée à l'échantillon. Pour la géométrie plan-plan, on relève sur un essai un creusement de 1mm, et pour la géométrie Couette, un creusement d'une profondeur de 15mm. On peut proposer une correction sur les valeurs de contraintes pour chaque géométrie

$$\text{Couette : } \tau_{correc} = \frac{M}{2\pi h_{correc} R_1^2} = 1.3 * \tau \quad (2.1)$$

$$\text{Plan-plan : } \tau_{correc} = \frac{3M}{2\pi R_{correc}^3} = 1.13 * \tau \quad (2.2)$$

La prise en compte de ce phénomène de creusement, visualisé clairement sur les deux géométries, fournit des courbes d'écoulement montante et descendante qui cette fois sont proches l'une de l'autre (figure 2.11). On note au passage que bien que le creusement soit seulement d'1mm en plan-plan, l'impact sur la contrainte est important du fait de sa dépendance en  $R^3$ .



FIGURE 2.10 – Creusement du kaolin dans la géométrie plan-plan après un fort cisaillement

### 2.3.2 Courbes d'écoulement du kaolin

Compte tenu des observations sur les effets de bord, on propose un protocole de mesure des propriétés de cisaillement du kaolin qui permet de limiter les erreurs dues au creusement. Dans une géométrie Couette, la suspension de kaolin est précisailée pendant 10min à  $100s^{-1}$ , de manière à toujours démarrer les mesures dans le même état initial (figure 2.12, carrés noirs). Après un temps de repos de 5s qui sert à supprimer les effets inertiels du précisaillement, une rampe montante puis descendante est imposée à l'échantillon. Les valeurs de contrainte de ces rampes sont ensuite corrigées avec les données

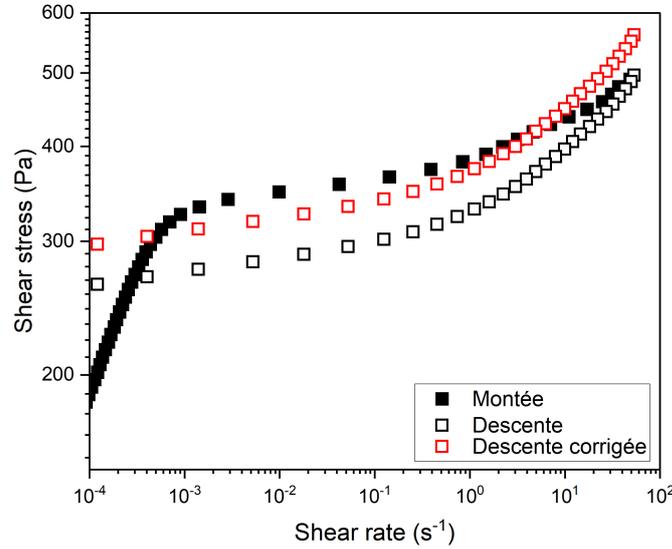


FIGURE 2.11 – Contrainte vs taux de cisaillement du kaolin par des rampes de contraintes montante puis descendante après précisaillement. La courbe de carrés rouges vides correspond à la courbe de carrés noirs vides avec une contrainte multipliée par un coefficient correcteur du précisaillement.

du précisaillement : le coefficient multiplicateur vaut  $\frac{\tau_{preshear}(t=1s)}{\tau_{preshear}(t=600s)} \cdot \tau_{preshear}(t=1s)$  est la contrainte du premier point relevé, à un temps suffisamment faible pour que le creusement ne se soit pas encore fait. Sur cette courbe corrigée, le comportement du kaolin est bien décrit par un modèle de Herschel-Bulkley avec les paramètres  $\tau_c = 309Pa$ ,  $K = 80Pa \cdot s^n$  et  $n = 0.33$  (figure 2.13).

On ajoute à la figure 2.13 les valeurs de contrainte vs taux de déformation obtenues par une série d'essais de fluage. Pour obtenir les données de fluage, on commence par mettre la suspension de kaolin dans un état initial en la précisillant 10min à  $100s^{-1}$ . Entre chaque fluage, on impose un cisaillement de 30s à  $100s^{-1}$  pour remettre le kaolin dans un état de référence avant le fluage suivant (figure 2.12, points rouges). La valeur de la contrainte de chaque fluage est choisie de manière aléatoire entre une valeur minimale (contrainte seuil) et une valeur maximale choisie de manière à entraîner un taux de déformation d'environ  $100s^{-1}$ .

Lorsque l'objectif est principalement de connaître le seuil de la suspension sans nécessairement être précis sur la courbe d'écoulement, une rampe de contrainte sans pré-

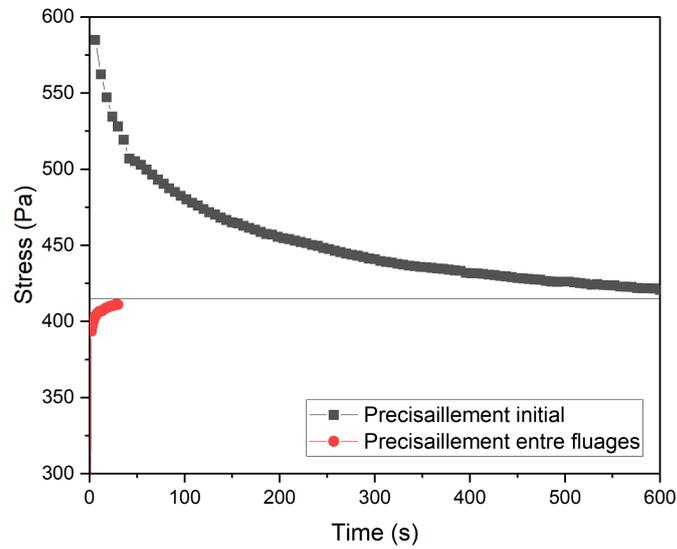


FIGURE 2.12 – Evolution de la contrainte pendant un précisaillement à taux de déformation imposé de  $100s^{-1}$

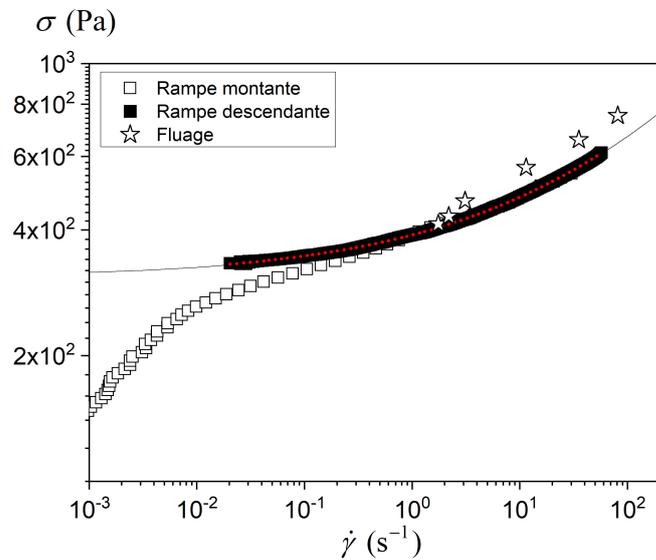


FIGURE 2.13 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montante et descendante (carrés) et fluage (étoiles) du kaolin dans une géométrie Couette

cisaillement est satisfaisante. Il n'y a pas besoin de préciser le matériau car les déformations resteront assez faibles jusqu'au seuil pour qu'il n'y ait pas de phénomène de

creusement. Ces essais dans une géométrie plan-plan fournissent les valeurs des seuils de suspensions de kaolin préparées à des concentrations différentes (figure 2.14), en considérant que le seuil est atteint au démarrage du plateau, qui se situe pour ces essais à  $\dot{\gamma} \approx 10^{-2} s^{-1}$ . On rappelle que du creusement se fait dès que le taux de déformation devient important, donc la partie de la courbe d'écoulement au-dessus du seuil serait à corriger si on voulait l'utiliser pour caractériser l'écoulement complet des kaolins aux différentes concentrations.

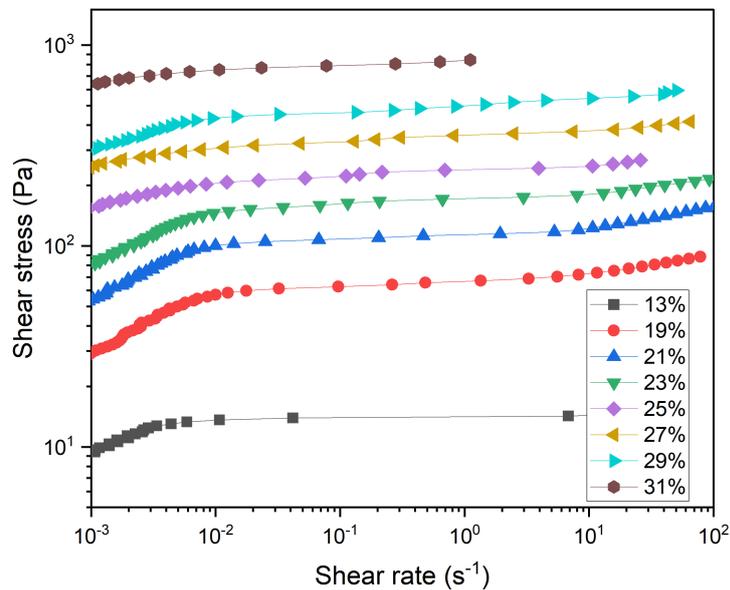


FIGURE 2.14 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montantes (sans précisaillement) du kaolin à des concentrations volumiques entre 13% et 31% dans une géométrie Couette

### 2.3.3 Comportement solide

En dessous du seuil, le kaolin se comporte comme un solide, c'est-à-dire qu'il ne s'écoule pas alors que la contrainte qui lui est imposée est non nulle. On visualise ce comportement par des essais de fluages. Les essais se font dans une géométrie Couette comme pour la caractérisation du comportement en écoulement. Les contraintes imposées sont variées de manière aléatoire entre 0Pa et une valeur seuil repérée préalablement par une rampe de contrainte, et valant 286Pa sur cet essai. Les déformations sont suivies en fonction du temps, et sont montrées sur la figure 2.15. La courbe à 286Pa semble exhi-

ber une déformation constante et finie d'environ 20%, avant d'augmenter soudainement après 40s de fluage. Ce comportement "limite" marque le seuil de contrainte, transition du comportement solide vers le comportement liquide. Pour les contraintes inférieures ou égales à 265Pa, les déformations sont finies, et l'évolution est faible entre le premier point de mesure à 1s et le dernier à 120s. Elle n'est pas nulle cependant à cause d'effets de dissipation d'énergie. Pour les éviter, on considère que les déformations à un temps faible décrivent le mieux le comportement du kaolin dans son domaine solide, et sont repérées en rouges sur la figure 2.15.

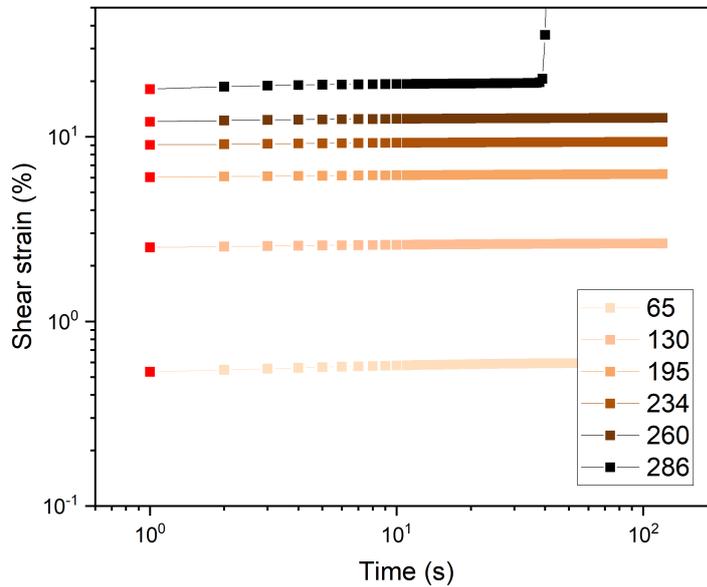


FIGURE 2.15 – Déformation vs temps par des essais de fluage du kaolin ( $\phi = 27\%$ ) à des contraintes inférieures à 286Pa

On montre sur la figure 2.16 deux courbes contrainte vs déformation à partir de deux séries de fluage. Les deux courbes ici montrées sont très similaires. Le dernier point du fluage noté 1 (données de la figure 2.15) est le point qui avait été repéré comme limite du seuil. La courbe est linéaire dans une échelle log-log, donc pourrait être décrite par une loi de puissance. Nous discutons plus en détail de la modélisation du comportement solide du kaolin dans la section suivante.

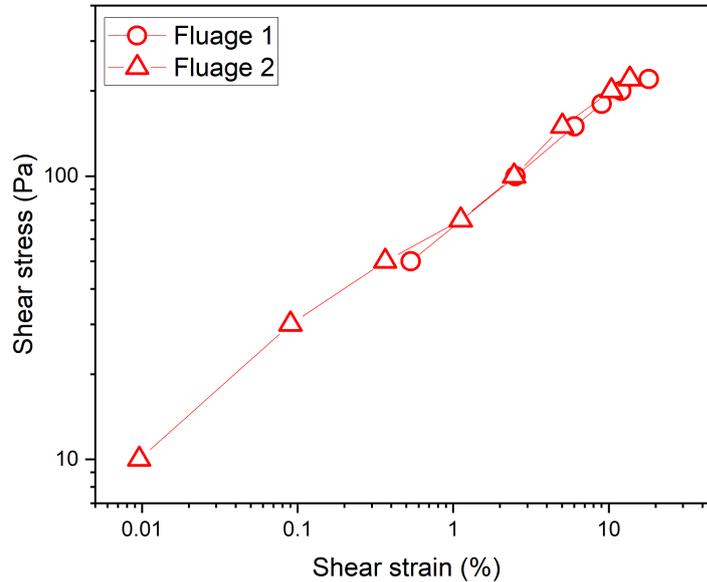


FIGURE 2.16 – Contrainte vs déformation du kaolin ( $\phi = 27\%$ ) par des essais de fluage à des contraintes inférieures à 286Pa

### 2.3.4 Elasticité, plasticité, viscosité du kaolin

En faisant l'hypothèse où la suspension est essentiellement viscoélastique, on peut faire le développement du calcul pour un matériau viscoélastique et sa réponse à des oscillations. Ici, on évalue la pertinence d'une telle hypothèse en regardant la réponse du kaolin à des oscillations sinusoïdales d'amplitude croissante (figure 2.17). La suspension se déforme en étant déphasée par rapport à l'instruction appliquée. Cette réponse déphasée peut être découpée en une réponse élastique en phase et une réponse visqueuse en opposition de phase avec l'instruction. Dans l'hypothèse viscoélastique, la suspension montre alors un module élastique  $G' = 2 * 10^5 Pa$  sur un domaine de déformations allant jusqu'à 0.03%, puis ce module diminue jusqu'à valoir quelques centaines de Pascals à 10% de déformation. Le module visqueux  $G''$ , lui, est constant et vaut  $2,5 * 10^4 Pa$  jusqu'à 0.1% de déformation. Sa courbe diminue en passant au-dessus de celle du module élastique à 1% de déformation. Les essais de fluage avaient montré que la déformation au niveau du seuil de contrainte était d'environ 20%. Cet essai d'oscillation montre que l'élasticité, qui est importante jusqu'à 0.03%, devient très faible sur le reste du domaine solide entre 0.03% et 20% de déformation. La composante de viscosité diminue aussi à ces déformations. Il nous semble donc que le modèle viscoélastique ne soit pas suffisant pour expliquer le comportement du kaolin dans l'ensemble du domaine solide. Il nous

faut penser la plasticité du kaolin.

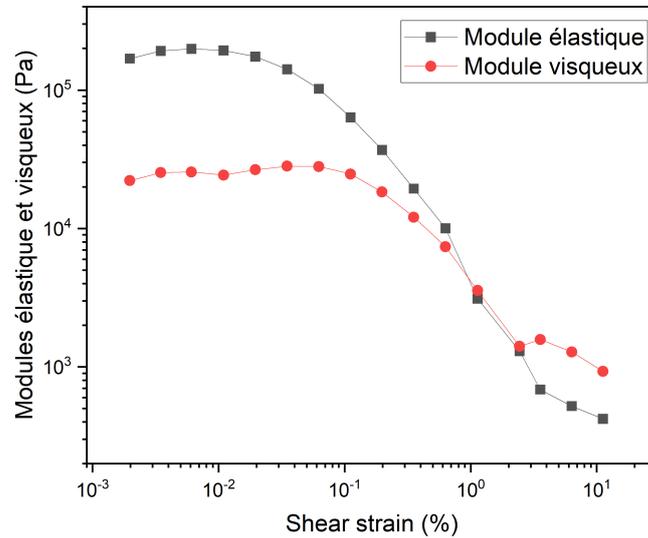


FIGURE 2.17 – Modules élastique et visqueux du kaolin en fonction de la déformation

La plasticité et la viscosité décrivent des comportements non réversibles où l'énergie apportée pour déformer le matériau est dissipée, par opposition à l'élasticité où l'énergie est stockée dans le matériau, ce qui permet au matériau de récupérer sa forme une fois que la contrainte appliquée est relâchée. Ainsi, en appliquant une contrainte puis en la relâchant, la mesure de la récupération de déformation renseigne sur la proportion entre élasticité et phénomènes dissipatifs, plasticité ou viscosité. De plus, la plasticité produit une déformation instantanée, alors que la viscosité en produit une proportionnelle au temps. Finalement, pour mesurer la dissipation plastique, on propose de faire un essai de fluage de 2s puis de relâcher la contrainte, et de mesurer les déformations avant et juste après relâchement de contrainte. Dans la figure 2.18, le temps a été réinitialisé à  $t=0s$  au début de la récupération (relâchement de la contrainte).

Sur ces essais de fluage puis récupération, la déformation à  $t=0s$  est la déformation totale sous contrainte imposée. Lorsque la contrainte est retirée, il reste une déformation plastique non récupérée par le matériau. La différence entre la déformation totale et la déformation non récupérée est une déformation élastique. On trace l'évolution des contraintes élastiques, plastiques et totales avec la contrainte sur la figure 2.19).

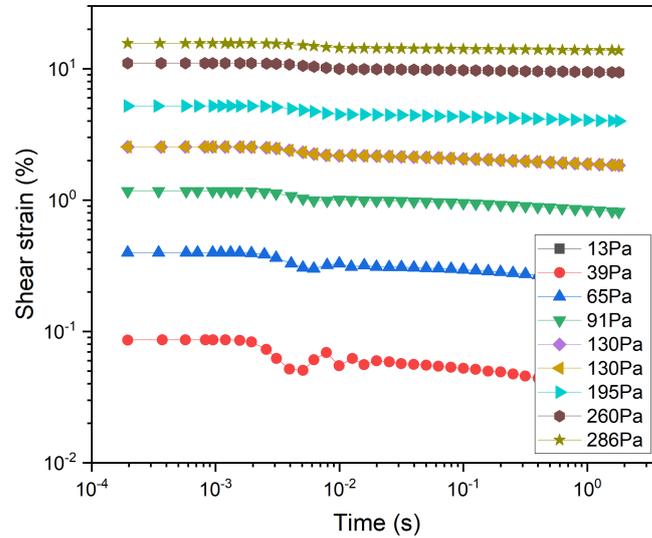


FIGURE 2.18 – Déformation vs temps du kaolin par des essais de fluage puis récupération à une contrainte inférieure à 286Pa

Ces essais montrent que la suspension de kaolin se comporte principalement comme un matériau plastique en-dessous du seuil. L’insert permet de mieux constater que la contribution élastique est importante seulement pour des contraintes très inférieures au seuil.

## 2.4 Rhéométrie en cisaillement du ciment

### 2.4.1 Courbes d’écoulement

Dans un premier temps, le but est de mesurer un seuil d’écoulement de la pâte de ciment sans repos. Pour cela, la stratégie basique consiste à venir placer l’échantillon dans sa géométrie rapidement après l’avoir préparé (voir section 2.1), et lancer une mesure.

#### Géométrie plan-plan et forces normales

Dans une géométrie plan-plan rugueuse, nous avons appliqué un taux de déformation constant de  $5 * 10^{-3} s^{-1}$ , qui implique une augmentation constante de la déformation. On montre sur la figure 2.20 les valeurs de seuil obtenues à  $E/C=0.4$ , en faisant varier l’entrefer entre 1 et 4mm. Les seuils trouvés avec un entrefer de 1mm varient entre 100Pa et 1200Pa. Pourtant, entre chaque essai, la même procédure est suivie. Nous faisons des essais similaires à des entrefers de 2, 3, et 4mm. A 3 et 4mm, nous n’observons plus de

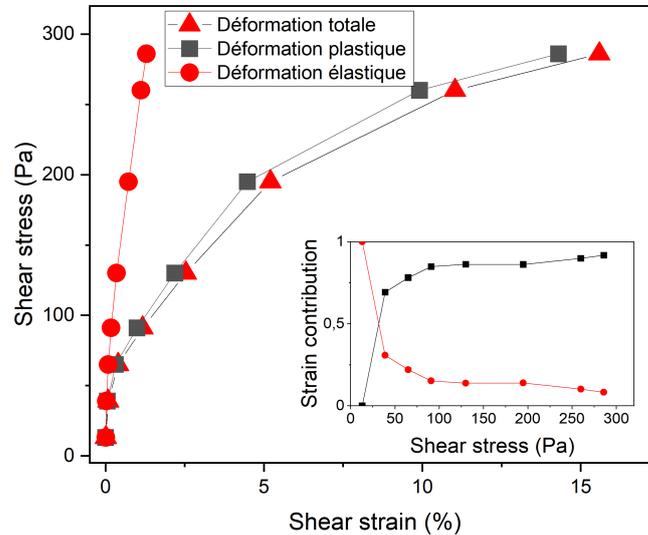


FIGURE 2.19 – Contrainte vs déformation du kaolin par des essais de fluage puis récupération à une contrainte inférieure à 286Pa. La déformation totale est représentée par des triangles rouges, la déformation plastique par des carrés noirs et la déformation élastique par des points rouges. L’insert montre la part de la contribution élastique (rouge) et plastique (noir) dans la déformation totale en fonction de la contrainte.

valeurs de seuil très hautes, les seuils sont compris entre 60 et 100Pa. De plus, sur un essai à 1mm et un essai à 2mm, où les valeurs de seuil étaient encore très variables, nous relevons très légèrement la géométrie, ce qui a pour effet de rendre nulle la force normale selon  $z$  (commande du rhéomètre), puis nous faisons l’essai. Les seuils mesurés valent 150 et 100Pa respectivement (symboles vides sur la figure 2.20). En traçant la figure 2.21, un lien semble apparaître entre la force normale développée dans l’entrefer et le seuil en cisaillement mesuré. Une explication pourrait être que la force normale importante aux faibles entrefers serait le fait d’un phénomène de blocage ou de coincement, comme cela peut être le cas pour des écoulements granulaires. Cela expliquerait qu’elle serait plus importante lorsque l’entrefer est de 1mm plutôt que 4mm, car une chaîne de contacts pourrait plus facilement parcourir cet entrefer de 1mm que celui de 4mm. La différence entre deux essais donnant pour l’un un seuil très élevé et l’autre un seuil faible peut même s’observer sur les images des essais (figure 2.22). Pour un même entrefer de 2mm, la surface du ciment ayant donné un fort seuil est striée, tandis que l’aspect du ciment sur l’autre essai est lisse.

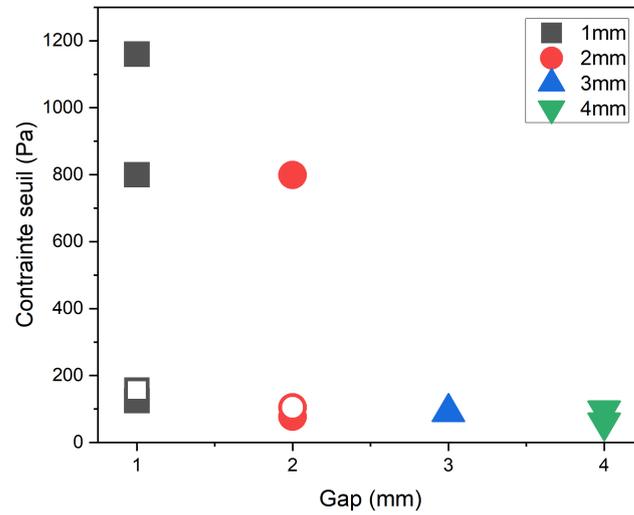


FIGURE 2.20 – Seuil de contrainte apparent pour plusieurs hauteurs d'entrefers ("gaps" sur la figure). Essais en géométrie plan-plan à taux de déformation constant de  $5 * 10^{-3} s^{-1}$

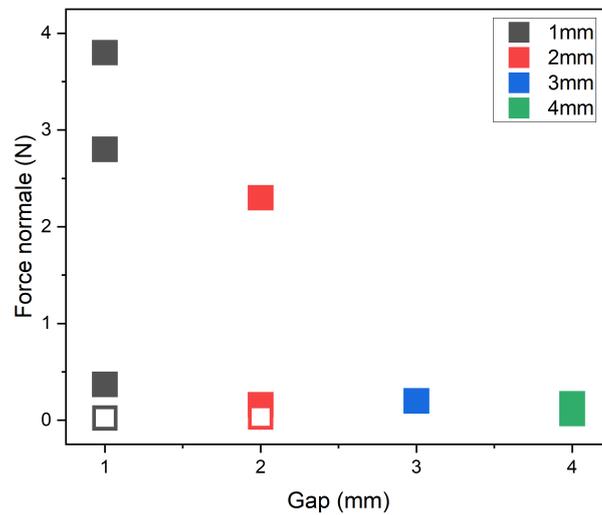


FIGURE 2.21 – Force normale au moment où le seuil apparent est atteint pour plusieurs hauteurs d'entrefers ("gaps" sur la figure). Essais en géométrie plan-plan à taux de déformation constant de  $5 * 10^{-3} s^{-1}$

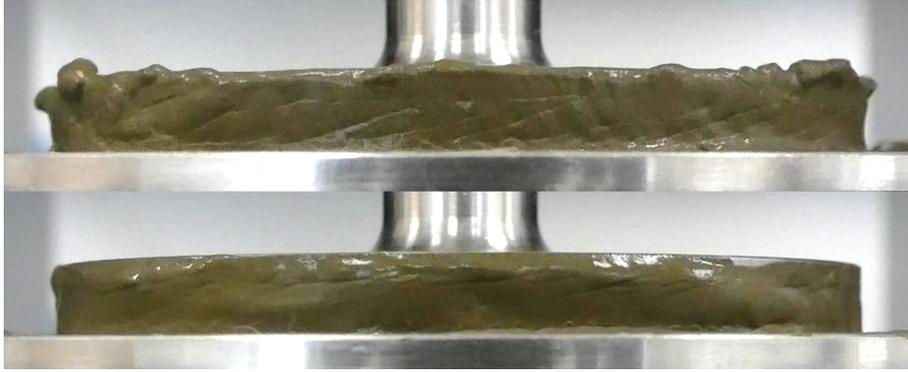


FIGURE 2.22 – Suivi visuel du coincement : photographies de l’essai plan-plan lorsque la contrainte a atteint le seuil. En haut : entrefer de 2mm et valeur de seuil  $\tau_c = 800Pa$ . En bas : entrefer de 2mm et valeur de seuil  $\tau_c = 70Pa$ .

### Géométrie Vane pour les courbes d’écoulement

Par rapport à un essai à taux de déformation constant, imposer une rampe de contraintes montante a l’avantage de fournir aussi les données d’écoulement au-dessus du seuil. Dans une géométrie Vane avec un entrefer de 4.5mm, on impose donc une rampe de contraintes montante après avoir précisailonné le ciment pendant 1min à  $100s^{-1}$ . Cette géométrie, généralement utilisée pour caractériser des suspensions de ciment, devrait limiter les effets de contraintes normales observés sur la géométrie plan-plan. On montre les courbes d’écoulement obtenues pour l’ensemble des pâtes de ciment sans additif (E/C entre 0.35 et 0.5), ainsi que pour les pâtes de ciment avec additif (0.6% en HEMC) préparées à des E/C de 0.4 et 0.45 (figure 2.23). Les seuils de la pâte de ciment sans additif varient entre 20 et 70Pa, et ceux avec HEMC valent 90 et 150Pa. Pour une même concentration en ciment (E/C=0.4), l’HEMC augmente la valeur du seuil de 40 à 150Pa.

Ces valeurs de seuil sont inférieures aux valeurs les plus faibles trouvées par la géométrie plan-plan. Les effets de forces normales sont donc probablement négligeables dans ces essais avec une géométrie Vane. Des essais analogues dans une géométrie Couette avec un entrefer de 1mm ont donné des seuils similaires à ceux obtenus avec la géométrie Vane. La façon dont la suspension s’écoule dans ces géométries est effectivement très proche, mais la taille de l’entrefer dans le Couette ainsi que le volume de pâte qu’il déplace au moment où il est inséré aurait pu induire des effets de coincement. Au cours de la thèse, nous avons principalement fait des essais de rhéométrie en cisaillement en utilisant une géométrie Vane. Occasionnellement, quand le volume de ciment à disposition était trop faible (inférieur aux 60mL nécessaires pour remplir le Vane), nous avons utilisé la géométrie Couette.

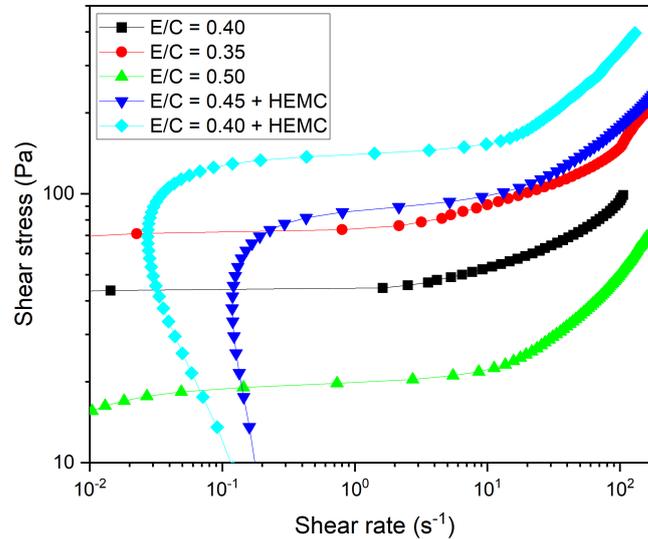


FIGURE 2.23 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montantes du ciment avec et sans additif dans une géométrie Vane

### 2.4.2 Thixotropie du ciment

Le ciment est un matériau thixotrope, dont le comportement rhéologique évolue lorsque des produits d'hydratation se développent. Il est généralement observé que ce développement se fait d'abord par des premiers produits d'hydratation (essentiellement ettringite) puis par des ponts CSH entre les particules. Ces produits ont pour effet notamment d'augmenter le seuil de manière significative sur des temps de l'ordre de quelques minutes (MARCHON et al. 2018, ROUSSEL, OVARLEZ et al. 2012). Ici, on regarde l'impact de la structuration du ciment à partir de l'étude de 2 écoulements :

- Rampe de contrainte descendante après une rampe montante
- Rampe remontante après la rampe descendante

On reprend les courbes d'écoulement de la figure 2.23 en leur ajoutant une descente (figure 2.24). Pour chacune des courbes, la courbe descendante se situe sous la première courbe montante. Cette différence est un signe de la thixotropie du ciment. En comparaison avec la courbe descendante, la première courbe montante est très plate au début de l'écoulement, puis sa pente augmente à partir de quelques  $s^{-1}$ . La courbe descendante se

superpose relativement bien à la montante sur les grandes vitesses de cisaillement, mais elle continue de descendre jusqu'au seuil dynamique qui est environ 2 fois plus faible que le seuil statique donné par la courbe montante.

Directement après la fin de la courbe descendante, on impose de nouveau une rampe de contraintes montante. La figure 2.25 montre les courbes associées pour le ciment sans additif à  $E/C=0.5$ . En considérant que l'écoulement s'est arrêté quand le taux de déformation est devenu inférieur à  $10^{-2} s^{-1}$ , la rampe de contrainte remontante a démarré une seconde seulement après l'arrêt de l'écoulement. Les produits d'hydratation n'ont pas eu le temps de se développer, mais le seuil est remonté pratiquement à la valeur de la première courbe montante. Cet essai semble donc mettre en évidence un effet de structuration instantané en plus des effets de structuration des produits d'hydratation.

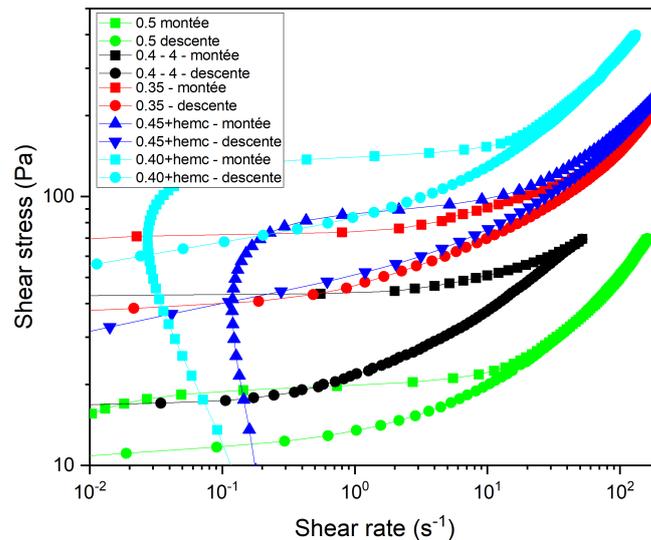


FIGURE 2.24 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montantes puis descendantes du ciment avec et sans additif dans une géométrie Vane

## 2.5 Machines

### Machine Instron pour l'extrusion

Pour étudier l'extrusion d'un filament puis sa séparation sous forme de goutte allongée, nous avons besoin d'une machine qui permette une extrusion depuis une grande

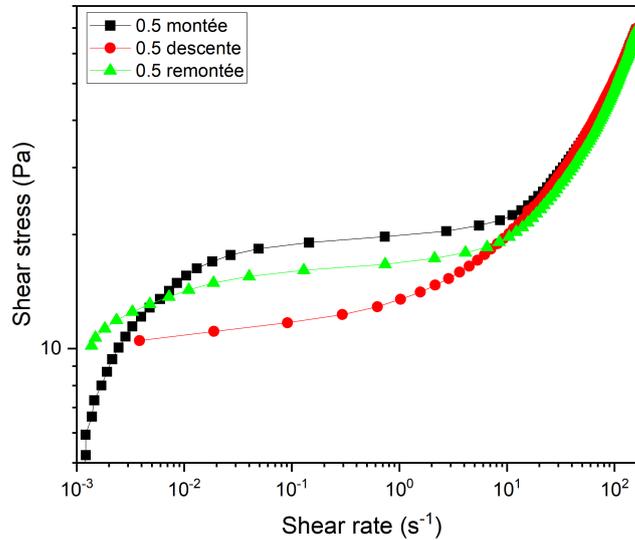


FIGURE 2.25 – Contrainte vs taux de cisaillement par des rampes de contraintes montante, descendante puis remontante du ciment sans additif à E/C=0.5 dans une géométrie Vane

hauteur à une vitesse contrôlée. Pour cela, nous avons adapté une machine de traction-compression Instron pour en faire une machine d'extrusion (voir figure 2.26). La machine Instron est initialement composée d'une géométrie haute, sur laquelle est posée une cellule de force (500N), qui est capable de se déplacer verticalement de manière contrôlée soit en force, soit en vitesse. La géométrie basse est fixée à la base de la machine, dans l'axe de la géométrie haute. La machine permet ainsi des essais d'écrasement ou d'étirement. Pour notre étude, nous avons supprimé la géométrie basse, et nous avons rajouté une pièce extérieure. La pièce en question est un socle monté sur 4 pieds, situé à 50cm de la base de la machine. Sur ce socle, qui est troué, vient se poser un récipient cylindrique, ouvert en haut, de diamètre 12cm et de hauteur 25cm. Au niveau du trou du socle, on vient fixer une buse cylindrique dont le diamètre peut varier entre 0.5 et 4cm. La géométrie haute est, elle, remplacée par un piston de diamètre 12cm aussi, qui peut rentrer par le haut dans le récipient cylindrique, et pousser du matériau qui est alors extrudé à travers la buse, formant un filament.

Grâce à ce montage, il est possible d'extruder des filaments avec des diamètres de l'ordre de ce qui est utilisé dans l'impression 3D pour la construction. Le deuxième intérêt important est que la machine Instron permet un contrôle précis à 0.2% de la vitesse de son piston jusqu'à 0.01mm/min. L'erreur est suffisamment faible pour être négligeable

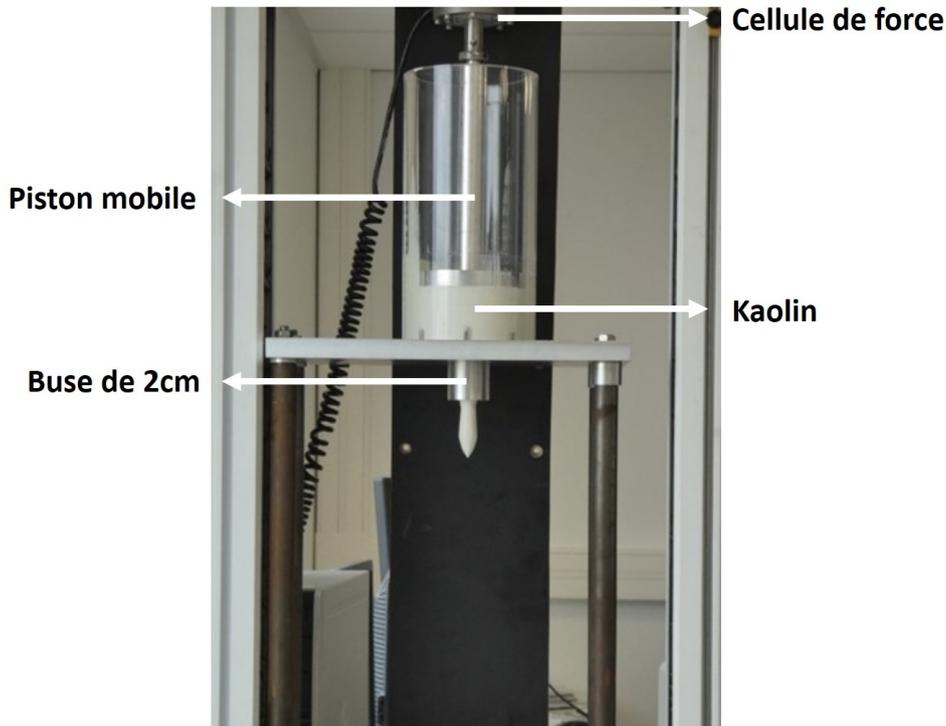


FIGURE 2.26 – Machine de traction Instron modifiée pour l’extrusion

devant d’autres erreurs. Comme le chemin du matériau est très simple (récipient puis extrusion) il est simple d’utiliser différents fluides à seuil, notamment le ciment.

Une analyse est développée à partir des films des extrusions des filaments. Les principes des codes permettant cette analyse sont donnés dans les chapitres 3 et 4 où ces codes sont utilisés. Les détails des codes et des méthodes utilisées pour les construire sont données dans l’annexe B.

### **Machine Instron pour les dépôts**

Pour faire un dépôt linéaire, il faut qu’une buse extrude un filament tout en étant en translation par rapport à la surface de dépôt. Dans une imprimante 3D, c’est la buse qui se déplace au-dessus d’une surface fixe. Avec notre machine d’extrusion, on peut rajouter un convoyeur sous la buse, de manière à ce que la surface de dépôt soit en translation par rapport à la buse. De cette manière aussi, on peut déposer une ligne de filament. Nous avons donc rajouté une platine convoyeuse Newton, qui peut se déplacer sur 80cm à des vitesses contrôlées. Cette platine est contrôlée indépendamment de la machine Instron. Cela permet d’imprimer des lignes en découplant la vitesse de sortie du filament

et la vitesse de translation de la buse par rapport à la surface de dépôt. Dans la suite de l'étude, il sera important de pouvoir étudier séparément ces paramètres. L'étude des dépôts peut aussi se faire sur l'imprimante 3D Wasp présentée plus bas. Sur la machine Instron cependant, comme les filaments extrudés ont des diamètres entre 0.5 et 4cm, les lignes déposées sont plus grosses (et plus longues) qu'avec l'imprimante Wasp, qui est limitée à des diamètres de 3mm. Les filaments déposés avec la machine Instron atteignent ainsi des dimensions de l'ordre de grandeur de ce qui est utilisé dans la construction par impression 3D.

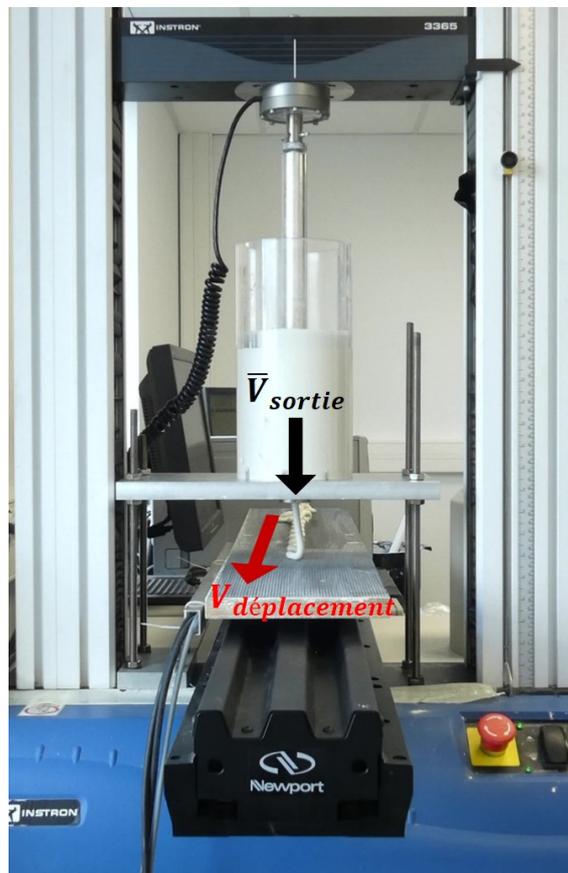


FIGURE 2.27 – Couplage des machines d'extrusion Instron et platine Newton pour faire des dépôts de filaments

### Imprimante argile

En complément de la machine Instron, nous utilisons une imprimante 3D Wasp clay 2040. Elle est composée d'une enceinte de stockage de 3L, dans laquelle un piston permet de pousser la pâte d'argile hors de l'enceinte. Le côté piston est relié à une source

d'air comprimé, et l'autre côté, poussant la pâte, est relié au système d'extrusion par un tube en téflon. Le système d'extrusion, visible sur la figure 2.28 utilise une vis sans fin pour amener la pâte arrivée par le tube en téflon vers la buse d'impression à une vitesse contrôlée. Le diamètre de la buse d'impression peut varier entre 1.2 et 3mm. Cette imprimante n'est pas utilisable avec des pâtes de ciment, mais elle permet d'imprimer la suspension de kaolin. Elle imprime correctement les pâtes de kaolin à partir de  $\phi = 0.24$ , et jusqu'à au moins  $\phi = 0.44$ , limite de notre domaine d'étude.

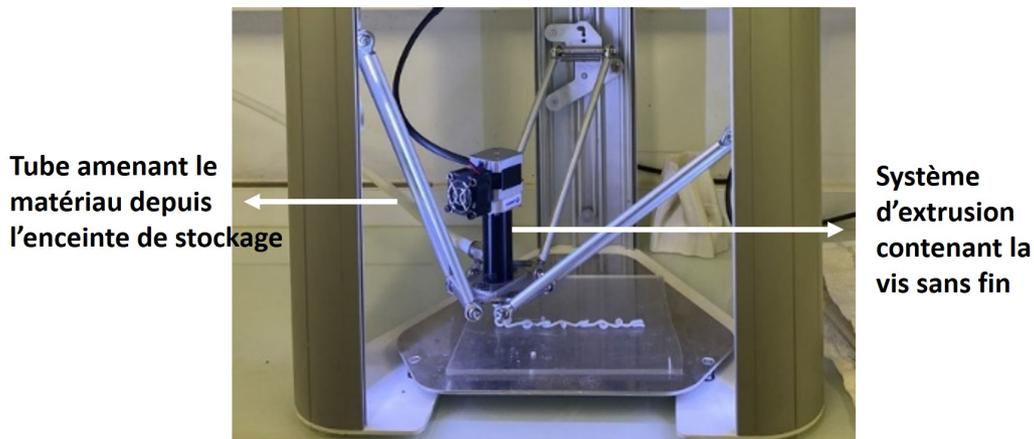


FIGURE 2.28 – Imprimante 3D Wasp clay 2040 utilisée pour imprimer du kaolin

Pour imprimer des objets 3D, l'imprimante lit un code, dans un format gcode, qui donne les instructions de mise en rotation de la vis sans fin ainsi que de déplacement de la buse sur les axes x,y et z. Pour une utilisation classique, un objet 3D est dessiné sur un logiciel dédié, puis il est découpé en une addition de couches imprimables, sous format gcode, avec un logiciel de "slicing". Ici, nous avons utilisé l'imprimante de manière plus "simple", car nous avons essentiellement fait des dépôts linéaires d'une seule couche. Nous avons donc directement écrit les codes qui nous intéressaient, en utilisant les fonctions basiques des gcodes :

- G0 et G1 : mise en mouvement sans (G0) et avec (G1) extrusion
- F : Vitesse d'extrusion en mm/min
- E : Longueur extrudée en mm
- X, Y, Z : Coordonnées visées selon x, y et z

Le code suivant dépose ainsi une ligne de 200mm à la vitesse de 10mm/s avec une buse de 1.2mm :

G0 F2500 X100.0 Y0 Z2.4;Placement à la position de démarrage

G1 F600.0 X-100.0 Y0 E60;Extrusion

Ce code ci extrude du kaolin sans se déplacer :

G0 F2500 X0 Y0 Z40;Placement à la position de démarrage

G1 F600.0 E60;Extrusion

Dans l'étude des motifs de dépôts, un code est construit de manière à imprimer 8 lignes de 160mm chacune. La hauteur de dépôt z et la vitesse d'extrusion sont constantes tout au long de l'impression. Le choix de la vitesse est justifié dans l'annexe A. Les lignes sont espacées les unes des autres de 20mm. Entre chaque ligne, la vitesse de déplacement de la buse varie (à travers E qui est changé). Ainsi, chacune des 8 lignes est imprimée avec des paramètres de vitesse différents. Les codes sont modifiés de manière à être adaptés aux buses de 1.2mm ou 3mm, à faire des dépôts à des hauteurs différentes, ou à des gammes de vitesses de déplacement différentes.

## Chapitre 3

# Loi de comportement en élongation

### 3.1 Observations générales

Dans ce chapitre, on étudie un filament de fluide à seuil extrudé depuis une grande hauteur, qui va se déformer puis rompre par l'action de la gravité. La compréhension de cet écoulement va nous permettre de développer des méthodes générales de caractérisation des propriétés d'écoulement des fluides à seuils.

Plusieurs méthodes de traction ont été développées pour mesurer les propriétés élongationnelles de différents matériaux. Pour les polymères, les méthodes de traction d'un filament fin sont bien adaptées car le filament s'allonge en restant cylindrique pendant la traction. Pour les fluides à seuil, c'est parfois assez complexe. Au bilan, le modèle 3D homogène de Herschel-Bulkley est plutôt pris comme base pour modéliser le comportement en élongation des fluides à seuil. Expérimentalement, les études se sont intéressées à trouver des valeurs de seuils de contrainte en élongation. En comparaison à la prédiction du modèle, le seuil en élongation expérimental est généralement supérieur à la prédiction, avec un écart qui varie, selon la méthode et le matériau, entre une et trois fois le modèle, c'est-à-dire que le seuil en élongation vaut entre  $\sqrt{3}$  et  $3\sqrt{3}$  fois le seuil en cisaillement.

On va s'intéresser à l'évolution de la forme d'un filament entre le moment où il commence à sortir de la buse, et le moment où il s'est détaché à cause de la gravité. Les expériences sont faites sur la machine d'extrusion Instron (voir section 2.5), pour laquelle il est possible de faire varier le diamètre de la buse et la vitesse de sortie. Les fluides à seuil étudiés sont le kaolin à différentes concentrations, l'émulsion et le gel de carbopol. Le ciment a nécessité un traitement pratique particulier et sera étudié séparément à la fin du chapitre. On a vu dans l'étude de rhéométrie en cisaillement (section 2.3) que les

écoulements de tous les fluides à seuil simples étudiés étaient bien décrits en cisaillement par un modèle de Herschel-Bulkley.

#### 3.1.1 Modélisation du problème de goutte

Un filament de fluide à seuil est extrudé par une buse cylindrique. Notre hypothèse sur le matériau est simplement qu'il montre une transition directe entre ses régimes solide et liquide, et qu'il est incompressible. La buse est une conduite de diamètre  $D_0$  et de longueur  $3D_0$ . Cette longueur permet de considérer que le champ de vitesses de l'écoulement juste avant la sortie de buse est à peu près établi (RABIDEAU, MOUCHERONT, BERTRAND, RODTS, ROUSSEL et al. 2010) et, pour un fluide à seuil de plus de 100Pa dans une section de l'ordre du centimètre, le front est très plat. En sortie de buse, le cisaillement aux parois disparaît. Il y a donc éventuellement un temps avant que la portion qui était en cisaillement arrête de s'écouler, puis une extrusion d'un "bloc". Comme le profil du champ de vitesse avant la sortie est déjà très proche d'un écoulement en "bloc", ce temps de transition vers l'écoulement en "bloc" est probablement assez court pour ne pas avoir d'impact sur la forme du filament extrudé. On peut alors s'intéresser au filament sorti de la buse.

##### Aspect du filament

On commence par étudier l'aspect du filament aux différents temps de l'extrusion. On peut délimiter plusieurs zones remarquables sur le filament (figure 3.1) :

- Le bas du filament a une forme conique inversée qui résulte de la séparation de la goutte précédente.
- Après que la goutte précédente se détache, il y a de nouveau du filament qui est extrudé. Celui-ci prend une forme cylindrique, imposée par la forme de la buse. Une section du filament qui sort de la buse a son diamètre juste au niveau de la buse qui est forcé d'être égal au diamètre de la buse. Mais une fois que cette section est sortie de la buse, ses déformations sont dictées par la gravité. Le poids situé sous cette section impose une contrainte normale qui étire le filament. Finalement, le filament est dans une conformation où sa section juste au-dessus du cône inversé, notée A (voir figure 3.1, image (c)), a un diamètre donné ; une section juste au-dessus de A a une masse de filament en-dessous d'elle plus importante que A, elle est donc soumise à une contrainte plus grande et son diamètre est donc plus faible que A. Le diamètre de la section juste en sortie de buse (notée C), est, lui, égal au diamètre de la buse. Le filament entre A et C a donc un profil

incurvé, avec un minimum de diamètre pour une section B située entre A et C.

- Cela est vrai et visible sur la série d'images de la figure 3.1 seulement dans un premier temps de l'extrusion où les déformations que subit le filament sont finies (images (a), (b) et (c)). Mais dans un deuxième temps, les déformations se développent très rapidement et provoquent la rupture du filament. Sur l'image du filament juste avant sa séparation (image (e)), on voit que la pente est devenue plus grande sur le haut de la goutte, là où les déformations se sont développées rapidement, que dans le bas de la goutte qui avait été extrudé dans le premier temps de l'extrusion. Attention, on est dans une deuxième partie en termes à la fois de temporalité (derniers temps de l'extrusion) et de position (partie haute de la goutte).

#### **Zones solide et liquide**

On est en train d'observer un fluide à seuil, dont on sait qu'il montre une transition entre un comportement solide et un comportement liquide pour une certaine contrainte seuil. Le domaine des déformations finies est à associer au domaine solide. Il est représenté en vert dans la figure 3.1. Dans ce domaine, sur une image (à un temps donné), le rayon diminue doucement avec l'augmentation de Z, car la contrainte due à la gravité augmente linéairement. Pour une certaine hauteur, la contrainte imposée à la section dépasse la contrainte que peut supporter le fluide à seuil sans s'écouler. Les sections de matériau dont la contrainte dépasse le seuil se mettent à s'écouler, à une vitesse qui augmente avec l'augmentation de la contrainte.

Suivons une section du filament. À sa sortie, elle a un diamètre égal au diamètre de la buse. Mais elle est soumise à la gravité. Son diamètre va donc progressivement diminuer avec l'avancée de l'extrusion. Le diamètre ne peut pas atteindre directement le diamètre correspondant à l'équilibre des forces de gravité parce que la forme est partiellement imposée par la liaison à la buse. Quand elle est suffisamment éloignée de la buse, la section va atteindre le point B, c'est-à-dire que son diamètre va être le minimum de diamètre. Ensuite, selon le temps où la section suivie devient la section minimale :

- Comme sur l'image (b), la section atteint le minimum de diamètre (point B, dont la section est repérée en orange), puis arrête de se déformer. Elle finit dans la zone verte, et est repérée de nouveau en orange sur l'image (c). Ce propos peut être légèrement nuancé, car la section peut aussi continuer doucement de fluer si la contrainte est proche du seuil. Si elle flue, le rayon diminue, ce qui entraîne une augmentation de la contrainte, et peut éventuellement faire dépasser le seuil.
- Comme sur les images (d) ou (e), la section suivie est proche (au-dessus ou en-dessous)

du point de pincement final. Il y a un moment de l'extrusion où, quelque part dans le filament, la contrainte dépasse le seuil. À cet endroit, le matériau commence à s'écouler. Il entraîne nécessairement la réduction de section d'un peu de matériau en-dessous et au-dessus. Puisqu'il y a une réduction de la section, il y a une augmentation de la contrainte, qui peut alors à son tour dépasser le seuil. De cette manière, la quantité de filament en écoulement augmente à mesure que la séparation avance. Finalement, c'est toute une zone (rouge) autour du pincement qui est en écoulement.

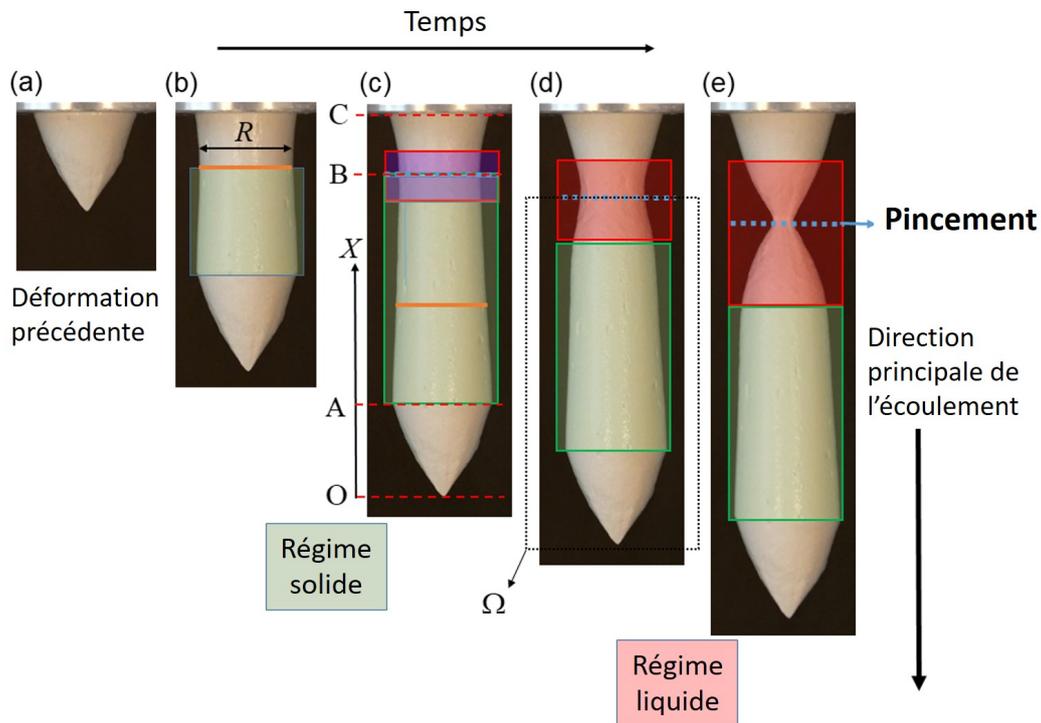


FIGURE 3.1 – Images successives du filament (ici kaolin,  $D_0 = 2\text{cm}$ ) au cours de son extrusion. (a) cône formé par le détachement de la goutte précédente, (b) et (c) développement du régime solide (vert), (d) et (e) développement du régime liquide (rouge). Une section de fluide est marquée en orange pour être suivie au cours de l'extrusion (images (a) et (b)). Le pincement est repéré en pointillés bleus sur les images (c), (d) et (e).

On retrouve les différents aspects de cette analyse sur les 3 fluides à seuil simples étudiés, dont un exemple d'extrusion pour chacun est donné par les figures 3.2, 3.3 et 3.4.

### 3.1. OBSERVATIONS GÉNÉRALES

---

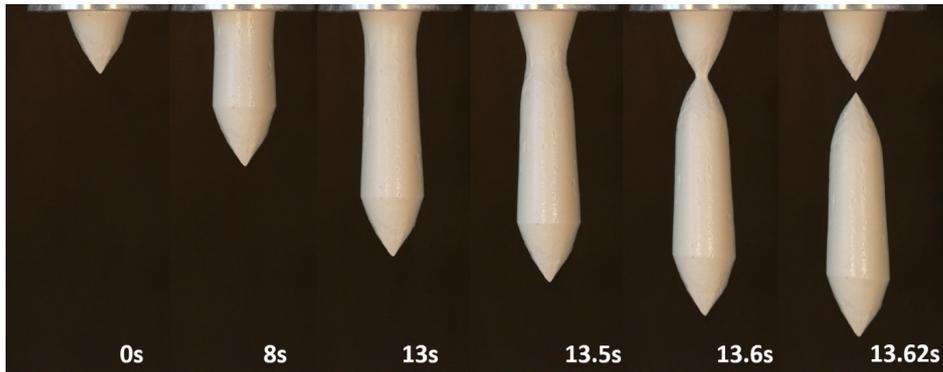


FIGURE 3.2 – Filament de kaolin extrudé par une buse de diamètre  $D_0 = 2\text{cm}$  à  $\bar{V}_{\text{sortie}} = 3.6\text{mm.s}^{-1}$  à différents temps de son extrusion

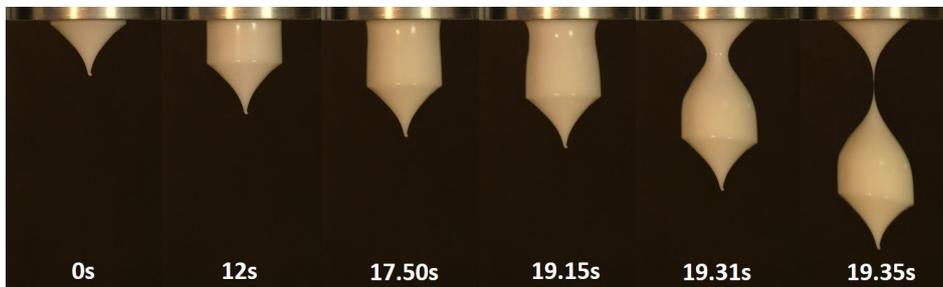


FIGURE 3.3 – Filament d'émulsion extrudé par une buse de diamètre  $D_0 = 2\text{cm}$  à  $\bar{V}_{\text{sortie}} = 0.9\text{mm.s}^{-1}$  à différents temps de son extrusion

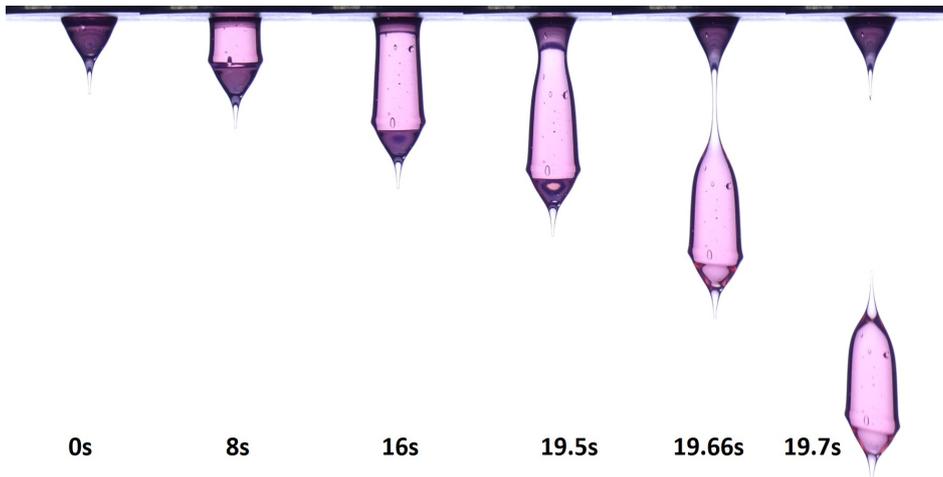


FIGURE 3.4 – Filament de carbopol extrudé par une buse de diamètre  $D_0 = 1\text{cm}$  à  $\bar{V}_{\text{sortie}} = 0.9\text{mm.s}^{-1}$  à différents temps de son extrusion

### 3.1.2 Profils

#### Obtention d'un profil et répétabilité

Une extrusion est filmée par une caméra Lumix FZ282 à une résolution de  $1920 \times 1080$  pixels et à 60 images par secondes. Le film d'une extrusion est analysé avec un code que j'ai écrit sur Python. Construit à partir des méthodes développées dans l'annexe B), ce code permet d'extraire les profils des gouttes à chaque temps de l'extrusion, entre le début de l'extrusion et la séparation de la goutte. Pour représenter ces profils, on pose un repère dont l'origine est en bas du cône inversé. Le repère est donc en translation verticale, descendant avec le temps. On trace le rayon externe du filament en abscisses vs la hauteur à laquelle il se situe en ordonnée (figure 3.5).

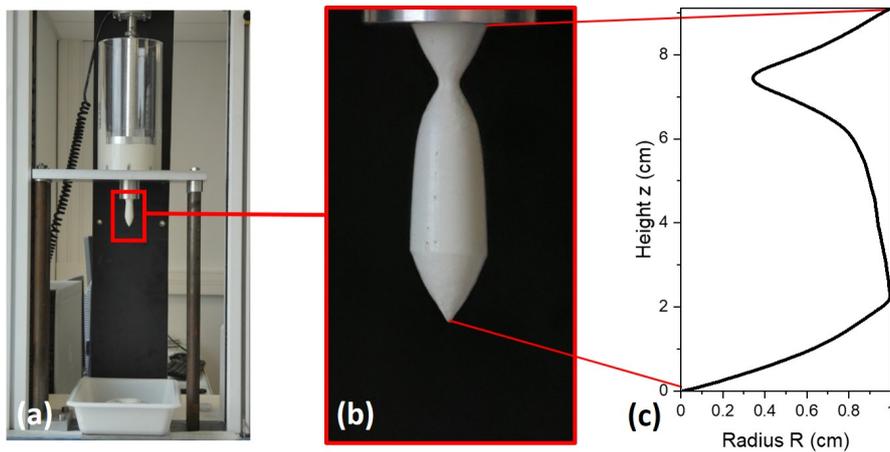


FIGURE 3.5 – Acquisition des données pour l'expérience d'élongation. (a) Machine de traction Instron extrudant le matériau (ici la suspension de kaolin à  $3.6 \text{ mm/s}$ ) par une buse cylindrique (ici  $D_0 = 2 \text{ cm}$ ). (b) Image du filament, et (c) rayon vs hauteur extraits de cette image. Le rayon correspond à la mesure du diamètre divisé par 2.

Le rayon du profil montré sur la figure 3.5 correspond à la mesure du diamètre divisé par 2. Il est plus simple de mesurer le diamètre, bien délimité à chaque hauteur  $Z$  par le passage d'un pixel noir à un pixel blanc, que le rayon, qui nécessite de connaître l'axe central du filament. Sur la figure 3.6, on compare les profils de l'émulsion obtenus par le diamètre, par le profil droit seulement et par le profil gauche seulement. Les profils gauche et droit sont tracés en considérant l'axe central comme la droite qui coupe perpendiculairement le plan de la buse en son milieu (axe  $Oz$ , fixe dans le repère du

laboratoire). La figure montre, sur 4 temps (donc 4 profils) de l'extrusion, que le profil obtenu par le diamètre, représenté par des ronds, moyenne bien les profils gauche et droit. Sur les profils gauche et droit, on voit aussi que le rayon du profil droit peut légèrement dépasser 1cm, ce qui signifie que l'axe central réel du filament peut légèrement dévier de l'axe vertical Oz au cours de l'extrusion. Prendre le diamètre permet de limiter les erreurs de mesure amenées par ces légères instabilités. La figure 3.7 montre les profils ainsi construits de 3 extrusions de filaments d'émulsion (à gauche) et de kaolin (à droite). Les profils de l'émulsion sont quasiment superposés, ce qui veut dire que les gouttes ont un aspect très répétable. Les profils de kaolin sont un peu plus dispersés. Dans les analyses qui suivent, on fera toujours les analyses sur au moins 3 profils de manière à avoir des résultats qui traduisent un comportement moyen.

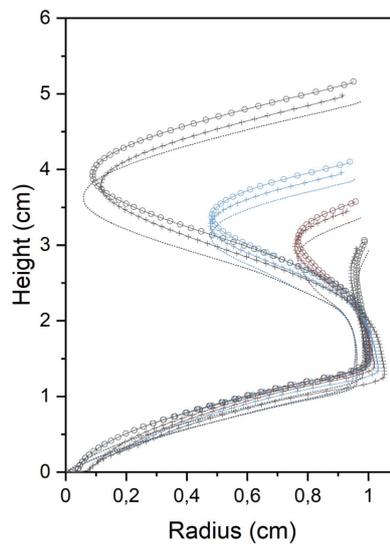


FIGURE 3.6 – Profils moyen (ronds), gauche (croix) et droit (points) de l'émulsion extrudée à  $0.9\text{mm/s}$  avec un diamètre de  $2\text{cm}$

#### Analyse des profils

Lorsque la qualité du profil est satisfaisante, il peut être utilisé pour voir plus précisément les différents domaines que nous avons repérés sur la série d'images de la figure 3.1. On propose de superposer les profils aux différents temps d'une extrusion (kaolin à  $0.36\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $D_0 = 2\text{cm}$ ) sur la figure 3.8. Sur cette figure, la légende donne le temps jusqu'à la séparation. J'ai choisi de prendre les images à des pas de temps bien spécifiques, de manière à avoir des déformations du même ordre entre deux profils. Le choix

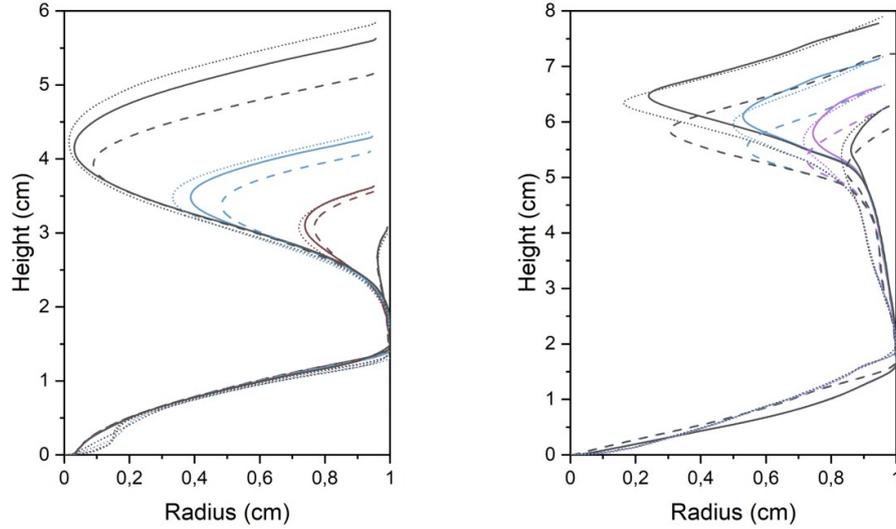


FIGURE 3.7 – Profils à 4 temps de l'extrusion, pour 3 extrusions (pointillés, traits ou ligne continue) avec les mêmes paramètres d'extrusion. Les paramètres sont : à gauche, émulsion à  $\bar{V}_{sortie} = 0.9mm.s$  et  $D_0 = 2cm$  ; à droite, kaolin à  $\bar{V}_{sortie} = 0.36mm.s$  et  $D_0 = 2cm$

du pas de temps est détaillé dans l'annexe B. Tous les profils ont en commun d'avoir un rayon nul à l'origine, qui augmente jusqu'à près de 1 (section A), rediminue jusqu'à un minimum (section B), puis augmente jusqu'à près de 1 à nouveau (section C). Le point le plus haut du profil n'est pas exactement le point en contact avec la buse mais est légèrement en-dessous, car il y a toujours un peu d'ombre juste sous la buse qui empêche de prolonger le profil jusqu'au bout. La valeur en Z (hauteur) du dernier point augmente avec le temps, ce qui traduit l'allongement de la goutte avec le temps.

Considérons le profil au temps avant cassure  $t_a = 9.09s$ , en orange sur la figure 3.8. On remarque que le profil suivant, au temps  $t_{a+1} = 7.29s$  est superposé sur le profil au temps  $t_a$  jusqu'au point qui correspond au rayon minimum pour le profil au temps  $t_a$ . Tout ce qui est sous ce point n'a pas bougé entre  $t_a$  et  $t_{a+1}$ . Le profil au temps  $t_{a+1}$  continue de diminuer de rayon, puis augmente. Maintenant, prenons le profil au temps  $t_b = 0.1s$ , en rouge sur la figure 3.8. Le profil au temps  $t_{b+1}$  est superposé jusqu'à un dernier point de superposition qui n'est pas le rayon minimum du profil à  $t_b$ . Cela veut dire que le rayon minimum du profil à  $t_b$ , ainsi que tous les points situés entre le dernier point de superposition et le rayon minimum, se sont déformés entre  $t_b$  et  $t_{b+1}$ . On remarque que la pente de ces points est plus importante que plus bas sur

### 3.1. OBSERVATIONS GÉNÉRALES

la goutte. Vu ce qui a été dit plus haut, cette portion a été en écoulement entre  $t_b$  et  $t_{b+1}$ .

En conclusion, ces profils confirment l'analyse de la section précédente en mettant en évidence une zone solide, pour laquelle les profils se superposent, et une zone liquide, où les déformations évoluent continuellement avec le temps. L'augmentation du rayon entre le rayon minimal et le dernier point haut est dictée par l'obligation de rattacher le filament à la buse. La zone liquide n'est pas très précisément délimitée et peut évoluer avec l'avancement de l'extrusion. Elle se caractérise néanmoins par des déformations qui varient avec le temps, et par une pente plus importante dans la zone liquide que dans la zone solide. Nous avons pensé dans un premier temps que la rupture de pente pouvait marquer la position du seuil de contrainte. Mais cette position semble évoluer avec le temps. Nous avons donc poursuivi l'étude en étudiant l'évolution des déformations du profil au cours du temps.

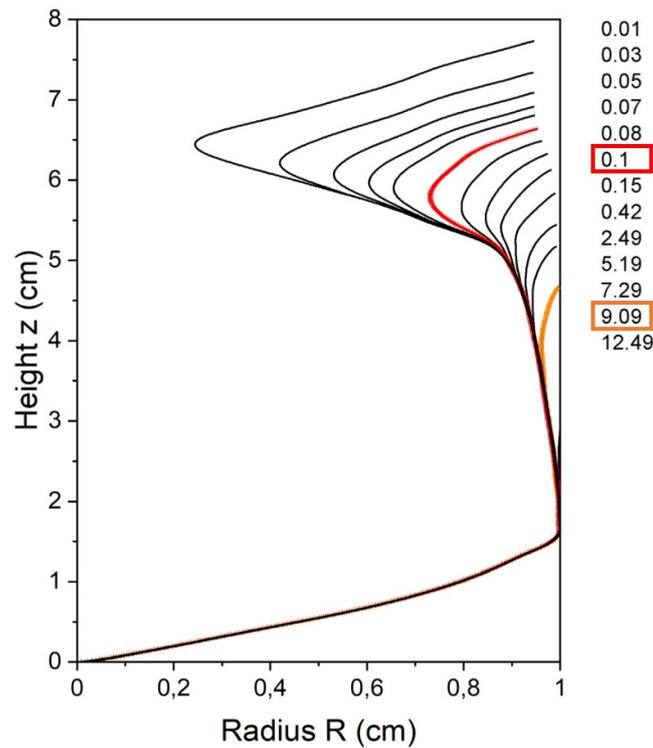


FIGURE 3.8 – Profils superposés du filament de kaolin à différents temps ( $\bar{V}_{sortie} = 0.36mm.s$ ,  $D_0 = 2cm$ ). On repère les profils dans le temps par rapport au temps qui leur reste avant la cassure. Le profil au temps avant cassure  $t_a = 9.09s$  est en orange, et celui à  $t_b = 0.1s$  est en rouge

### 3.1.3 Théorie

On dérive les expressions des tenseurs des taux de déformations et contraintes à partir des équations de conservation de la masse et du mouvement. Notre but est de décrire la partie du filament qui est en écoulement, pour récupérer les propriétés fluides du matériau.

On pose un certain nombre de variables :

$t$  le temps

$t_0$  le temps du détachement de la goutte précédente

$t_c$  le temps du détachement de la goutte étudiée

$z$  la hauteur d'une section dans le filament dans le repère fixe du laboratoire

$Z$  la hauteur d'une section dans le filament en prenant l'origine en bas du filament

$r$  est la distance à l'axe  $z$

$R(z, t)$  le rayon du filament à une hauteur et un temps

$R_0$  le rayon de la buse

Quand le filament sort de la buse, il est soumis à l'action de la gravité. Comme la buse est cylindrique, on choisit une description cylindrique du problème, dans les coordonnées  $(r, \theta, z)$ . La figure 3.9 schématise le filament au cours de son extrusion. L'ensemble du problème est symétrique par rapport à  $\theta$ . Autrement dit, si on fait une coupe du problème dans un plan  $rOz$ , peu importe  $\theta$ , le problème restera identique. On considère aussi qu'il n'y a pas de phénomène d'instabilité.

#### Expression du tenseur des taux de déformation

On note  $(v_r, v_\theta, v_z)$  les composantes du vecteur vitesse  $\mathbf{v}$ . Il n'y a pas de phénomène de rotation, donc la composante  $v_\theta$  est nulle. L'écoulement étant symétrique par rapport à  $\theta$ , les composantes  $v_r$  et  $v_z$  sont indépendantes de  $\theta$ . L'équation de conservation de la masse s'écrit de manière générale

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (3.1)$$

Dans un repère cylindrique, elle s'écrit

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} * \frac{\partial \rho r v_r}{\partial r} + \frac{1}{r} * \frac{\partial \rho v_\theta}{\partial \theta} + \frac{\partial \rho v_z}{\partial z} = 0 \quad (3.2)$$

Dans notre problème, elle se simplifie en

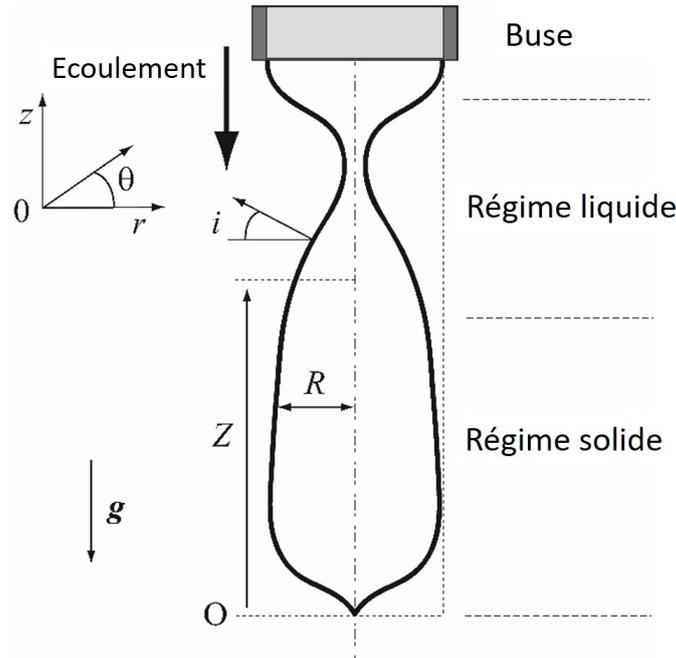


FIGURE 3.9 – Schéma du filament dans le repère cylindrique

$$\frac{1}{r} * \frac{\partial r v_r}{\partial r} + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (3.3)$$

Cette équation va nous permettre d'obtenir une expression du taux de déformation longitudinal, en faisant le lien entre les déformation radiales et longitudinales.

Pour cela, il nous faut maintenant faire l'hypothèse que la vitesse longitudinale  $v_z$  est indépendante de  $r$ . Ainsi, toutes les particules d'une section du filament à une hauteur  $z$  ont la même vitesse longitudinale, qu'elles soient au centre ou aux bords. Cette hypothèse est vérifiée à plusieurs endroits du filament. Dans le bloc solide du bas du filament, la vitesse est nulle donc égale pour tout  $r$ . À la sortie de la buse, le profil de vitesses  $v_z$  est plat, donc indépendant de  $r$ . La zone en écoulement sur laquelle on fait l'hypothèse est donc clôturée par deux sections où  $v_z$  ne dépend pas de  $r$ . S'il y a une section dans notre zone où  $v_z$  est fonction de  $r$ , par exemple où  $v_z$  aux bords est plus grande qu'au centre, alors il faut qu'il y ait une autre section avec la dynamique inverse pour conserver la matière, ce qui paraîtrait étonnant sans un moteur clair. De plus, comme pour l'expérience d'éloignement de deux plaques, la symétrie au niveau du pincement suggère que l'écoulement est approximativement antisymétrique par rapport au plan perpendiculaire au point de pincement. Cette hypothèse permet de faire le calcul qui suit, puisque  $v_z$  est uniquement fonction de  $z$  et de  $t$ .

$$\frac{\partial r v_r}{\partial r} = -r * \frac{\partial v_z}{\partial z} \quad (3.4)$$

$$\int_r \frac{\partial r v_r}{\partial r} \partial r = -\frac{\partial v_z}{\partial z} * \int_r r * \partial r \quad (3.5)$$

$$r v_r = \frac{\partial v_z}{\partial z} * \frac{r^2}{2} \quad (3.6)$$

$$v_r = \frac{r}{2} * \frac{\partial v_z}{\partial z} \quad (3.7)$$

On obtient une expression de  $v_r$  en fonction de  $v_z$ .  $\frac{\partial v_z}{\partial z}$  est le taux de déformation longitudinal, qu'on note aussi  $\dot{\epsilon}$ . On peut donc écrire  $\dot{\epsilon} = 2 * \frac{v_r}{r}$ . Au niveau du profil, qui est la donnée à laquelle on a accès avec nos images,  $v_r = \frac{dR}{dt}$ , donc

$$\dot{\epsilon} = \frac{2}{R} * \frac{dR}{dt} \quad (3.8)$$

Après cela, on peut exprimer le tenseur des taux de déformation pour notre problème

$$\bar{D} = \frac{1}{2}(\bar{\nabla}v + \bar{\nabla}v^T) \quad (3.9)$$

$$\bar{\nabla}v = \begin{bmatrix} \frac{\partial v_r}{\partial r} & 0 & \frac{\partial v_z}{\partial r} \\ 0 & 0 & 0 \\ \frac{\partial v_r}{\partial z} & 0 & \frac{\partial v_z}{\partial z} \end{bmatrix} \text{ et } \bar{\nabla}v^T = \begin{bmatrix} \frac{\partial v_r}{\partial r} & 0 & \frac{\partial v_r}{\partial z} \\ 0 & 0 & 0 \\ \frac{\partial v_z}{\partial r} & 0 & \frac{\partial v_z}{\partial z} \end{bmatrix} \quad (3.10)$$

$$\frac{\partial v_r}{\partial r} = \frac{\partial(-\frac{r}{2} * \dot{\epsilon})}{\partial r} = -\frac{\dot{\epsilon}}{2} \quad (3.11)$$

$$\frac{\partial v_r}{\partial z} = \frac{\partial(-\frac{r}{2} * \dot{\epsilon})}{\partial z} = -\frac{r}{2} * \frac{\partial \dot{\epsilon}}{\partial z} \quad (3.12)$$

$$\frac{\partial v_z}{\partial r} = 0 \quad (3.13)$$

$$\frac{\partial v_z}{\partial z} = \dot{\epsilon} \quad (3.14)$$

$$\text{Donc } \bar{D} = \begin{bmatrix} -\frac{\dot{\epsilon}}{2} & 0 & -\frac{r}{4} * \frac{\partial \dot{\epsilon}}{\partial z} \\ 0 & 0 & 0 \\ -\frac{r}{4} * \frac{\partial \dot{\epsilon}}{\partial z} & 0 & \dot{\epsilon} \end{bmatrix} \quad (3.15)$$

Ce tenseur contient des termes diagonaux et non diagonaux. Cela veut dire qu'avec la façon dont on a posé le problème, on attend que l'écoulement mixe élongation et cisaillement. On regardera plus en détail dans la suite les implications de cette expression du tenseur des taux de déformation sur l'écoulement. Dans les travaux précédents d'élongation (NIEDZWIEDZ, BUGGISCH et WILLENBACHER 2010, BALMFORTH, DUBASH

et SLIM 2010), l'hypothèse de  $v_z$  indépendante de  $r$  avait été combinée avec l'hypothèse d'un filament fin. Cette hypothèse implique pour les termes de dérivation que  $\frac{\partial}{\partial z} \ll \frac{\partial}{\partial r}$  et pour les termes de vitesse que  $v_r \ll v_z$ . Alors, la composantes de cisaillement du taux de déformation est faible devant la composante d'élongation et peut être négligée.

#### Expression du tenseur des contraintes

De manière similaire aux taux de déformation, on va pouvoir détailler les expressions des contraintes dans les 3 dimensions grâce à un bilan de la quantité de mouvement. En considérant qu'il n'y a pas de phénomène d'instabilité, il n'y a pas d'effet qui pourrait induire une rotation du filament. C'aurait pu être le cas par exemple dans un phénomène d'enroulement. Cela implique que les composantes  $\sigma_{r\theta}$  et  $\sigma_{\theta z}$  sont nulles. Par analogie avec l'hypothèse d'indépendance de la vitesse longitudinale par rapport à  $r$ , on fait l'hypothèse que  $\sigma_{zz}$  est indépendante de  $r$ . En plus d'être cohérente avec l'hypothèse sur les vitesses, cette dernière est motivée par le fait que la contrainte motrice de l'écoulement, la gravité, est surfacique, et est donc a priori la même pour toutes les particules d'une section.

Tension de surface : BALMFORTH, DUBASH et SLIM 2010 en ont fait une analyse détaillée en prenant en compte la pression de Laplace induite par la courbure du filament, et l'ont incluse dans le calcul d'équilibre des forces de leur étude de la rupture d'un fluide de Herschel-Bulkley. On propose ici une approche basique qui nous amène à négliger cet effet de la tension de surface dans nos conditions expérimentales. On compare l'ordre de grandeur des effets visqueux aux vitesses d'écoulement faibles (lorsque la contrainte est de l'ordre de la contrainte seuil) aux effets de tension de surface. Le travail associé à la contrainte normale durant la déformation élémentaire de traction d'une section avec une hauteur et un rayon initiaux  $h$  et  $R$  vaut

$$dP_v = -(\pi R^2 h) * 2\sigma_{zz} \frac{dR}{R} \quad (3.16)$$

La variation d'énergie de surface associée à cette déformation vaut

$$dP_s = -2\pi\gamma h dR \quad (3.17)$$

avec  $\gamma$  la tension de surface du fluide étudié. La comparaison de ces énergies amène à négliger les effets de tension de surface lorsque

$$\sigma_{zz} R \gg \gamma \quad (3.18)$$

### 3.1. OBSERVATIONS GÉNÉRALES

---

$\sigma_{zz}$  varie avec l'inverse du carré du rayon, donc, dans la région liquide,  $\sigma_{zz} * R$  est toujours supérieure à  $\sigma_c * R_0$ . Il suffit donc d'avoir

$$\sigma_c R_0 \gg \gamma \quad (3.19)$$

pour négliger les effets de tension de surface avec cette approche basique. On ajoute que lors de la prise en compte détaillée de l'effet de tension de surface par la pression de Laplace, il faut considérer la courbure dans le plan  $rOz$  (celle visible sur la figure 3.9) mais aussi celle dans le plan  $rO\theta$ . Au niveau du pincement, la première est convexe, tandis que l'autre est toujours concave, donnant une surface en forme de selle de cheval. On peut donc penser que les effets de ces deux courbures s'opposent et que l'effet de la tension de surface est bien représenté par notre approche basique. La tension de surface de nos matériaux peut-être considérée égale à la tension de surface du fluide interstitiel, qui vaut  $\gamma = 0.07 N.m^{-1}$  pour l'eau (BOUJLEL et COUSSOT 2013). Pour un fluide avec un seuil de 100Pa,  $\sigma_c R_0 > 10 * \gamma$  à condition que  $R_0 > 0.7cm$ . Ces conditions sont généralement remplies, et seront discutées dans le cas où elles ne le sont pas.

L'équation de conservation de la quantité de mouvement s'écrit de manière générale

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \mathbf{grad})\mathbf{v} = \rho \mathbf{g} - \nabla \cdot \Sigma \quad (3.20)$$

Dans un repère cylindrique, elle s'écrit, en projection sur  $z$ ,

$$\rho \frac{\partial v_z}{\partial t} + \rho \left( v_r \frac{\partial v_z}{\partial r} + \frac{v_\theta}{r} \frac{\partial v_z}{\partial \theta} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) = -\rho g + \frac{\partial r \sigma_{rz}}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{\theta z}}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} \quad (3.21)$$

Avec les symétries de notre problème et l'hypothèse faite, elle se simplifie en

$$\rho a = -\rho g + \frac{\partial r \sigma_{rz}}{\partial r} + \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} \quad (3.22)$$

avec  $a = \frac{dv_z}{dt} = \frac{\partial v_z}{\partial t} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z}$  l'accélération d'une particule de fluide. De manière similaire aux équations 3.4 à 3.7, on peut intégrer l'équation 3.22 entre 0 et  $R$  pour avoir

$$\rho a = -\rho g + 2 \frac{\sigma_{rz}(R)}{R} + \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} \quad (3.23)$$

Au niveau du profil, la surface est en contact avec l'air. L'équilibre des forces au niveau de la surface, qui est libre, s'écrit  $\Sigma \cdot n = 0$ . On peut écrire  $n = \cos(i)e_r + \sin(i)e_z$  où  $i$  est l'angle entre la normale au profil et l'axe  $r$  (voir figure 3.9). Alors, en projection sur

les axes  $r$  et  $z$ , l'équilibre des forces donne

$$\sigma_{rr}(R) * \cos(i) + \sigma_{rz}(R) * \sin(i) = 0 \quad (3.24)$$

$$\text{et } \sigma_{rz}(R) * \cos(i) + \sigma_{zz}(R) * \sin(i) = 0 \quad (3.25)$$

L'angle  $i$  est tel que  $\tan(i) = -\frac{\partial R}{\partial z}$ , ce qui permet d'écrire la relation

$$\sigma_{rz}(R) = \frac{\partial R}{\partial z} * \sigma_{zz}(R) \quad (3.26)$$

L'équation 3.23 se réécrit donc

$$\frac{\partial(R^2\sigma_{zz})}{\partial z} = \rho(g + a)R^2 \quad (3.27)$$

### Rhéométrie élongationnelle à partir des données des profils des gouttes

Pour développer les équations précédentes, nous nous sommes placés dans le repère (eulérien) fixe du laboratoire. En pratique, il est plus simple pour obtenir les données des évolutions du filament de se placer dans un repère (lagrangien) placé en bas de la goutte, qui se déplace verticalement avec la goutte. C'est alors la variable  $Z$ , utilisée pour le tracé des profils, qui mesure la hauteur du filament à partir de l'origine du repère  $O$  située en bas de la goutte. La donnée récupérée des profils est  $R(Z, t)$ .

L'équation 3.27 s'intègre entre 0 et  $Z$  pour donner

$$\sigma_{zz} = \frac{mg + q}{\pi R^2(Z, t)} \quad (3.28)$$

Avec  $m = \int_0^Z \rho\pi R^2(z, t)dz$  la masse de matériau situé sous la hauteur  $Z$ , et  $q = \int_0^Z \rho\pi R^2(z, t)a(z, t)dz$  la force d'inertie reliée à l'accélération  $a(z, t)$ . Cette force d'inertie devient importante sur les derniers temps de l'extrusion. Pour l'obtenir à partir des profils, on réécrit l'accélération  $a(z, t) = \frac{dv_z}{dt}$  sous forme de dérivées partielles

$$\frac{dv_z}{dt} = \frac{\partial v(Z)}{\partial t} \text{ avec } v(Z) = v(O) + \frac{\partial Z}{\partial t} \quad (3.29)$$

$\frac{\partial v(O)}{\partial t}$  est l'accélération du bas de la goutte dans le référentiel du laboratoire, et  $\frac{\partial^2 Z}{\partial t^2}$  est une accélération due à la déformation de la goutte.

Pour obtenir l'expression de  $\frac{\partial Z}{\partial t}$  avec les données de profils, on peut utiliser la conservation de la masse qui implique, si on suit une section de particules, que

$$\int_0^Z \rho \pi R^2(z, t) dz = cte \quad (3.30)$$

Cela implique que

$$\frac{\partial Z}{\partial t} = \frac{-2}{R^2} \int_0^Z R \frac{\partial R}{\partial t} dz \quad (3.31)$$

Alors, il est possible d'exprimer la contrainte  $\sigma_{zz}$  à partir des profils. Les contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{rz}$  suivent des équations 3.23, 3.24 et 3.25.

En parallèle, le taux de déformation longitudinal  $\dot{\epsilon}$  a été défini par l'équation 3.8. La position d'une section de particules de fluide située en  $Z$  au temps  $t$  varie avec le temps, donc  $\frac{dR}{dt}$  s'écrit

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\partial R}{\partial t} + \frac{\partial Z}{\partial t} * \frac{\partial R}{\partial Z} \quad (3.32)$$

$\frac{\partial R}{\partial t}$  et  $\frac{\partial R}{\partial Z}$  sont directement obtenus par les profils, et  $\frac{\partial Z}{\partial t}$  est donné par l'équation 3.31. Donc il est aussi possible de récupérer  $\dot{\epsilon}$  par les profils. L'ensemble des termes du tenseur des taux de déformation s'obtient alors directement de 3.15.

En résumé, en mesurant la forme d'un filament au cours de son extrusion, on peut déduire le tenseur des taux de déformation (équation 3.15 pour le tenseur et 3.8, 3.31 et 3.32 pour  $\dot{\epsilon}$ ) et le tenseur des contraintes (équation 3.28 pour le tenseur et 3.23, 3.24, 3.25 et 3.31 pour ses composantes), et ainsi déduire une loi de comportement du matériau.

## 3.2 Courbes d'écoulement élongationnelles

A partir des données des profils, on écrit un code pour l'analyse des déformations et des contraintes. Grâce aux relations établies dans la section 3.1.3, il est possible de calculer les tenseurs de taux de déformation et de contrainte en chaque point de chaque profil, c'est-à-dire d'obtenir des tenseurs locaux et instantanés. Il a fallu "simplement" discrétiser les relations continues pour pouvoir analyser les données par le code. Le code et les méthodes utilisées par le construire sont montrés dans l'annexe B.

### 3.2.1 Analyse du cisaillement

Précédemment, nous avons souligné que les frontières du régime liquide n'étaient pas déterminables à partir de l'observation de profils. Nous commençons donc par visualiser les données de contrainte normale  $\sigma_{zz}$  et taux de déformation longitudinal  $\dot{\epsilon}$  sur toute la hauteur d'un profil de kaolin extrudé par une buse de 2cm à 0.36mm. (figure 3.10). On note que pour faciliter l'analyse, on remplace le profil du bas de la goutte, qui est en réalité conique, par un profil droit avec le même volume. 3 parties apparaissent clairement sur la courbe d'écoulement. Sur les premiers points, la contrainte augmente et le taux de déformation est proche de 0 et à peu près constant. À partir d'un point, le taux de déformation augmente avec la contrainte. La courbe prend une forme croissante. Enfin, la courbe fait une sorte de demi-tour. La contrainte et le taux de déformation n'augmentent plus. On repère ce point remarquable sur un profil en l'entourant en rouge. La courbe fait son demi-tour au niveau du pincement (rayon minimal). Au-dessus du pincement, nous avons dit que la forme est en partie dictée par la liaison à la buse. Dans cette partie, l'écoulement n'est pas libre, les données de contrainte vs taux de déformation sont donc difficiles à analyser, et seront écartées de l'analyse dans la suite. La partie en dessous du pincement en revanche est libre de prendre la forme qui sera liée aux propriétés d'écoulement du fluide à seuil étudié.

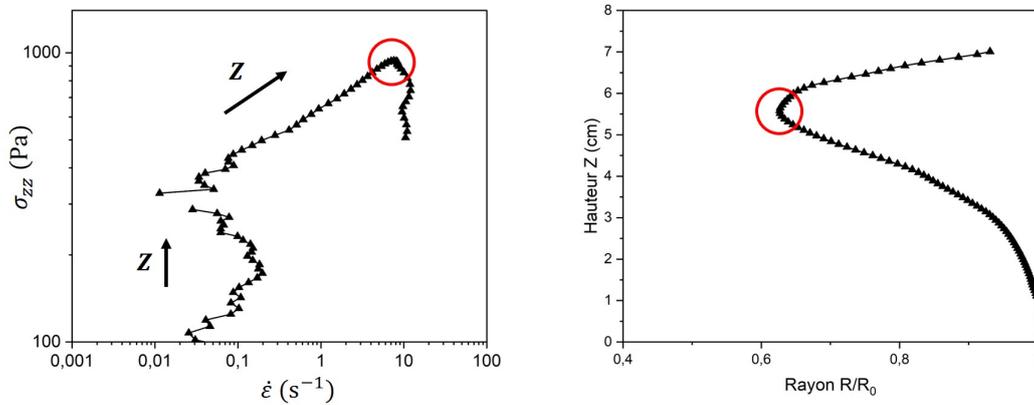


FIGURE 3.10 – Gauche : Courbe  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  avec les données de l'ensemble du profil. Droite : Le profil correspondant. Le point de pincement est repéré en rouge sur chaque graphe (kaolin à  $\bar{V}_{sortie} = 0.36mm.s$ ,  $D_0 = 2cm$ )

Il est intéressant de comparer les courbes d'écoulement construites à partir des profils des filaments à des courbes d'écoulement obtenues en rhéométrie en cisaillement par une

rampe de contraintes montante (figure 3.11). Sur le filament, les contraintes augmentent aussi de manière croissante sur la hauteur du profil, jusqu'au point de pincement. Les courbes d'écoulement en rhéométrie en cisaillement ressemblent aux courbes des filaments : elles montrent une première partie de courbe à des taux de déformation à peu près constants, puis ensuite une courbe croissante, qui rend compte de l'écoulement du fluide à seuil. La contrainte à laquelle le taux de déformation se met à augmenter significativement est la contrainte seuil en cisaillement. De manière analogue, on pense que dans la première partie de courbe, le filament est dans son régime solide. C'est la deuxième partie de courbe qui capture l'écoulement.

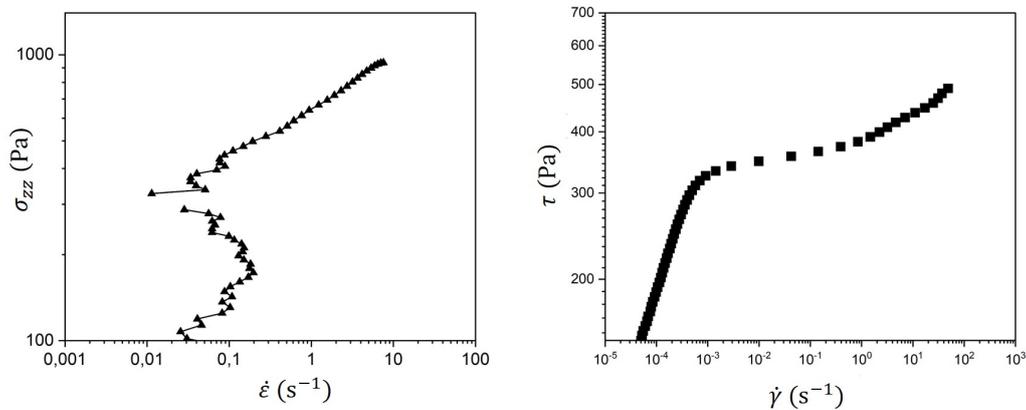


FIGURE 3.11 – Gauche : Courbe  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  avec les données sous le pincement. Droite : Courbe d'écoulement en cisaillement par une rampe de contraintes montante

Attention néanmoins à ne pas tirer une conclusion trop rapide sur les propriétés d'écoulement du fluide étudié. Regardons ce qui se passe quand on pose les deuxièmes parties de courbes à "tous" les temps (cf pas de temps de l'annexe B) de l'extrusion (figure 3.12). Les courbes ont toutes cette forme croissante. Nous avons tracé les contraintes normales vs taux longitudinaux. Il n'y a qu'une seule courbe qui caractérise le comportement d'un matériau en élongation. Si deux courbes diffèrent, cela signifie qu'elles rendent compte d'écoulements différents et ne représentent pas le comportement intrinsèque du matériau. Ici, les courbes ont une forme similaire, mais elles ne se superposent pas. Pour essayer de mieux comprendre quel est le type d'écoulement, on propose de calculer les composantes non diagonales des tenseurs des contraintes et taux de déformations, qui sont les composantes de cisaillement. Au passage, on montre sur la figure de droite les courbes obtenues en négligeant l'inertie. Aux derniers temps avant la séparation, la contrainte est largement surestimée, ce qui montre l'utilité de prendre en compte le

terme inertiel dans le calcul de la contrainte.

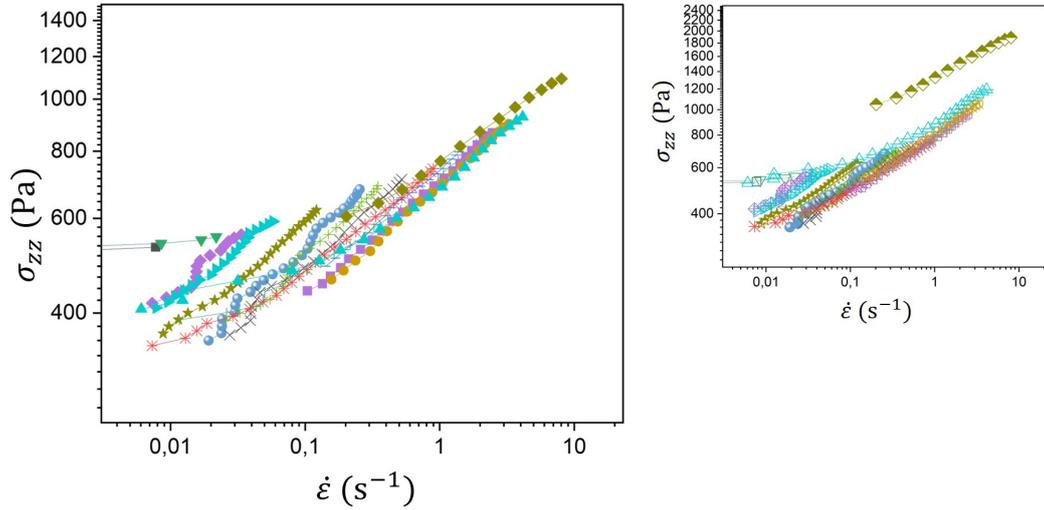


FIGURE 3.12 – Gauche : Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  à tous les temps de l'extrusion. Droite : Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  en négligeant le terme inertiel dans le calcul de  $\sigma_{zz}$  (kaolin à  $\bar{V}_{sortie} = 0.36\text{mm.s}$ ,  $D_0 = 2\text{cm}$ )

On comprend qu'il y a du cisaillement dans notre expérience si on regarde en détail deux couches de fluide (théoriques)(voir figure 3.13). Celle située en-dessous est soumise à une contrainte  $\sigma_A$ , et celle au-dessus à une contrainte  $\sigma_B > \sigma_A$ . La couche du haut s'écoule plus vite, c'est-à-dire se rétrécit plus vite que celle du bas, ce qui crée un gradient de vitesse entre les deux couches. Alors, il y a du cisaillement induit entre les deux couches.

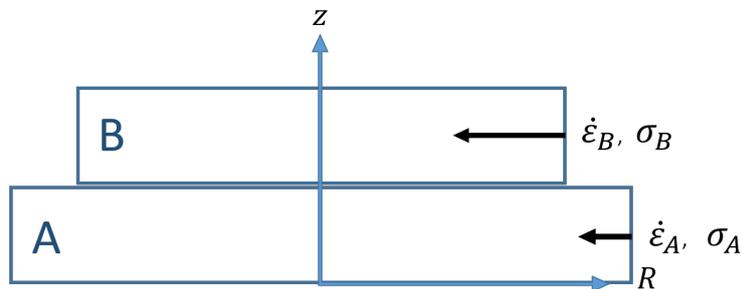


FIGURE 3.13 – Schéma d'une section de filament : cisaillement induit

On choisit de visualiser le cisaillement en le représentant sous la forme d'un rapport

entre composantes de cisaillement et d'élongation. De cette manière, on peut évaluer l'importance du cisaillement induit par rapport à l'écoulement d'élongation. On note les rapports  $\alpha$  et  $\beta$  tels que

$$\alpha = \frac{\sigma_{rz}}{\sigma_{zz}} \quad (3.33)$$

$$\beta = \frac{\dot{\epsilon}_{rz}}{\dot{\epsilon}_{zz}} \quad (3.34)$$

D'après l'écriture du tenseur des contraintes, il faudrait aussi prendre en compte les termes diagonaux  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  pour décrire complètement l'écoulement. D'après les équations 3.24 et 3.25,  $\sigma_{rr} = \tan^2(i) * \sigma_{zz}$ . Or,  $\tan(i)$  est quasiment toujours inférieure à 0.3 sur les images des profils, donc  $\tan^2(i) < 0.1$ . En l'absence de raison pour que  $\sigma_{\theta\theta}$  soit important, on peut supposer que  $\sigma_{\theta\theta}$  est de l'ordre de  $\sigma_{rr}$ . Donc ces deux termes diagonaux sont faibles devant le reste. Par conséquent, on choisit de les négliger.

En faisant cela, il apparaît que les rapports  $\alpha$  et  $\beta$  permettent de comprendre complètement comment se fait l'écoulement. Ils donnent l'information sur la proportion de chacune des composantes de contrainte et taux de déformation dans les 3 dimensions.  $\alpha$  et  $\beta$  sont des rapports locaux et instantanés, donc les données d'un profil fournissent une liste de  $\alpha$  et  $\beta$  (comme pour la courbe d'écoulement). Le tracé de  $\alpha$  et  $\beta$  dans une échelle logarithmique permet de constater directement que le cisaillement n'est pas nul au cours de l'extrusion. Sur la figure 3.14, on trace les courbes  $\alpha(\beta)$  d'un filament à plusieurs temps, ce qui permet de constater qu'elles ont une tendance commune. Comme sur la figure 3.12, on a utilisé les données identifiées comme étant dans la zone du filament en écoulement. Sur l'ensemble des courbes  $\alpha(\beta)$ , on identifie une première zone, pour les points près de la frontière solide, où  $\beta$  diminue fortement tandis que  $\alpha$  diminue légèrement, puis une deuxième zone plus proche du point de pincement, dans laquelle  $\alpha$  diminue fortement, jusqu'à atteindre un minimum au point de pincement.

Nous avons aussi cherché à étudier les seconds invariants des tenseurs des contraintes et taux de déformation, respectivement  $\Sigma_{II}$  et  $D_{II}$ . Ces termes pourraient montrer que la prise en compte de composantes de cisaillement est pertinente, mais les courbes  $\Sigma_{II}(D_{II})$  construites sur le modèle des courbes  $\alpha(\beta)$  ne nous ont pas permis de faire avancer notre réflexion.

En revanche, en restant sur l'étude des courbes  $\alpha(\beta)$ , il est possible de poursuivre l'analyse de la tendance remarquée ci-dessus. Nous remarquons que le point pour lequel les composantes de cisaillement sont les plus faibles, que ce soit en termes de taux de

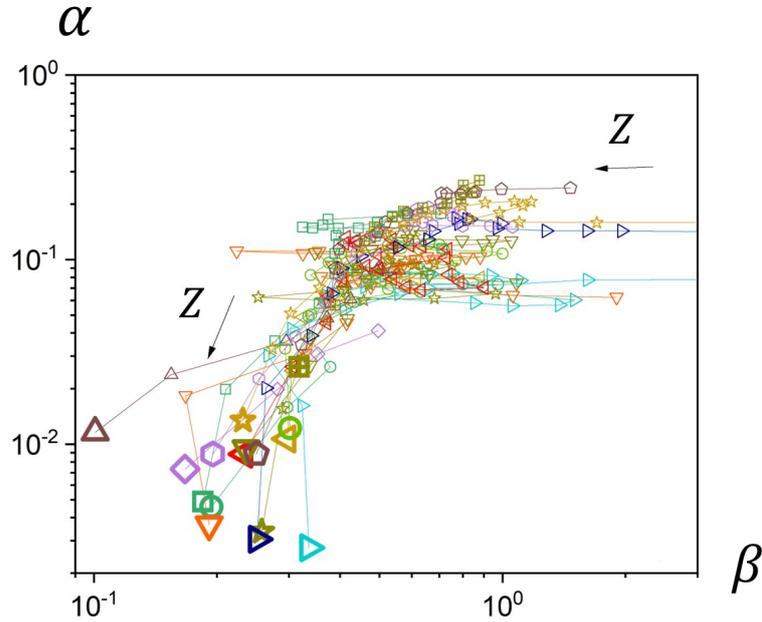


FIGURE 3.14 – Courbes  $\alpha(\beta)$  montrant l'importance du cisaillement relativement à l'élongation à tous les temps. Les données du pincement sont agrandies (kaolin à  $\bar{V}_{sortie} = 0.36\text{mm.s}$ ,  $D_0 = 2\text{cm}$ )

déformations ou de contraintes, est le dernier point sélectionné, c'est-à-dire le point de pincement. À cet endroit, la pente est presque nulle, donc la contrainte de cisaillement est faible. D'après la figure 3.14, elle est environ 100 fois inférieure à la contrainte normale. Le taux de déformation en cisaillement l'est moins, mais il est toujours au moins 2,5 fois inférieur à celui en élongation. Nous proposons de tracer une courbe qui contient uniquement les points de pincement, à tous les temps de l'extrusion. La figure 3.15 reprend les données de la figure 3.12 et met en évidence en noir les points correspondant au pincement, à chaque temps. On peut remarquer que cette courbe trace une limite supérieure de l'ensemble des points de la figure. L'intérêt de cette nouvelle courbe est que cette fois, tous les points de la courbe rendent compte d'un écoulement semblable, dans lequel il n'y a quasiment pas de contrainte de cisaillement, et peu de déformations de cisaillement induites. On cherche à savoir quel peut être l'écart entre la courbe ainsi construite et la courbe qui décrirait un écoulement élongationnel pur. Comme première approche, on peut se dire que si on propose d'interpréter cette courbe comme une courbe d'élongation pure, on peut faire une erreur qui serait de l'ordre des composantes de cisaillement résiduelles, donc de 1% sur la contrainte et 40% sur le taux de déformation. Vu la large plage de valeurs sur laquelle le taux de déformation varie, cette première

approche suggère que la courbe construite à partir des données au pincement offre une bonne idée du comportement en élongation.

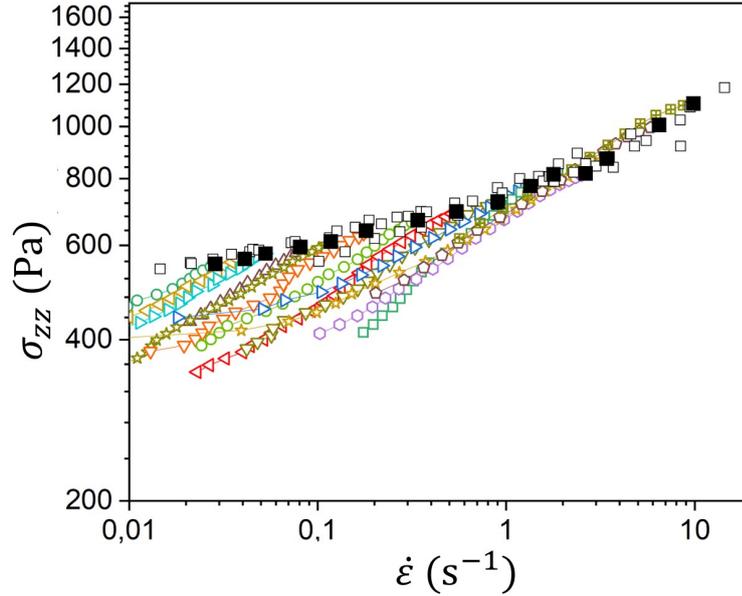


FIGURE 3.15 – Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  à tous les temps de l'extrusion avec les données de la figure 3.12. Les points correspondant au pincement sont en noir. Les courbes de 2 extrusions dans les mêmes conditions sont ajoutées, et les données de leur pincement sont les carrés blancs (kaolin à  $\bar{V}_{sortie} = 0.36 \text{ mm.s}$ ,  $D_0 = 2 \text{ cm}$ )

Jusqu'ici, la modélisation a été laissée de côté car la rhéométrie ne nécessitait pas d'a priori sur le comportement, mais elle peut nous être utile maintenant pour compléter le paragraphe ci-dessus. On rappelle la loi de comportement du modèle de Herschel-Bulkley 3D sous sa forme 3D tensorielle, sous celle appliquée au cisaillement et sous celle appliquée à l'élongation (équations 1.19, 1.20 et 1.21)

$$\text{Forme tensorielle : } \mathbf{T} = \left( \frac{2^n K}{(\sqrt{D_{II}})^{n-1}} + \frac{\tau_c}{\sqrt{D_{II}}} \right) \mathbf{D} \quad (3.35)$$

$$\text{Cisaillement : } \tau = \tau_c + K * \dot{\epsilon}^n \quad (3.36)$$

$$\text{Élongation : } \sigma_{zz} = \sqrt{3}(\tau_c + K * (\sqrt{3} * \dot{\epsilon})^n) \quad (3.37)$$

Pour l'écoulement tel qu'il est décrit par nos expressions des tenseurs des contraintes et taux de déformation, le second invariant du tenseur des taux de déformations s'écrit

$$D_{II} = \frac{1}{2} \text{tr} D^2 = \frac{3}{4} \dot{\epsilon}^2 * \left(1 + \frac{4\beta^2}{3}\right) \quad (3.38)$$

Alors, la contrainte normale s'écrit

$$\sigma_{zz} = \frac{\sqrt{3}}{A} (\tau_c + K * (\sqrt{3} * A * \dot{\epsilon})^n) \quad (3.39)$$

avec  $A = \sqrt{1 + 4/3 * \beta^2}$ . Or,  $\beta < 0.4$  sur l'ensemble des points de pincement. Selon cette nouvelle estimation de l'impact du cisaillement par le modèle de Heschel-Bulkley 3D, ce dernier induit une erreur de moins de 10% à la fois sur les valeurs de la contrainte normale et sur celles du taux de déformation élongationnel. Ce résultat s'appuie sur un modèle que nous questionnons justement, en faisant des mesures directes de rhéométrie, donc il est à prendre avec précaution. On l'utilise ici simplement pour mettre en évidence que les déformations de cisaillement induites par l'élongation ( $\beta$ ) peuvent à leur tour induire des phénomènes d'élongation ( $A$ ). Cet effet vient nuancer notre première idée que l'erreur sur la courbe d'écoulement élongationnelle est de l'ordre de la valeur du cisaillement. Elle est probablement liée au cisaillement de manière un peu plus complexe que cela.

Finalement, on peut tout de même penser que notre idée de prendre les données au point de pincement permet de bien approximer le comportement en élongation pure d'un fluide à seuil non thixotrope, avec une erreur de l'ordre de 10%.

#### 3.2.2 Courbes d'écoulement en élongation du kaolin

Jusqu'ici, nous avons étudié ces extrusions indépendamment de deux paramètres d'extrusion importants : le diamètre de la buse et la vitesse de sortie de buse. Le diamètre de la buse est maintenant varié entre 1 et 4cm de diamètre. La forme de la goutte change forcément, et, d'après l'expression du tenseur des taux de déformation (équation 3.15), le terme de cisaillement dépend linéairement du rayon. Le changement du diamètre de la buse entraîne donc des modifications dans l'écoulement. A des vitesses identiques, sur des extrusions à des diamètres de 1 et 4cm, on peut remarquer qu'en traçant  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  sur tous les points en écoulement (et pas seulement le pincement), le nuage de points construit par les courbes d'écoulement est plus large à  $D_0 = 4cm$  qu'à  $1cm$  (figure 3.16). On interprète cela comme une marque d'un cisaillement plus important pour le diamètre

plus large, qui peut entraîner un écart des données à celles de l'élongation pure plus important.

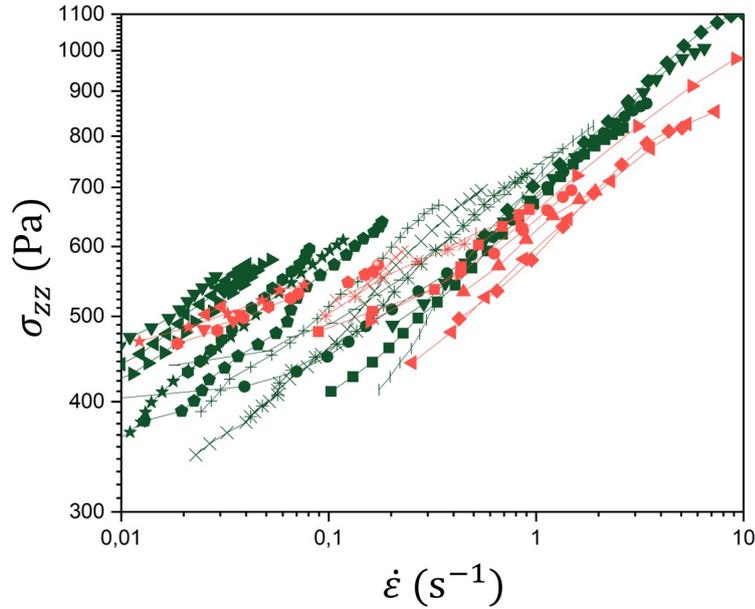


FIGURE 3.16 – Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  à tous les temps de l'extrusion pour des kaolins extrudés avec des buses de diamètre  $D_0 = 1\text{cm}$  en rouge et  $D_0 = 4\text{cm}$  en vert.

La vitesse de sortie de buse est aussi variée, jusque sur 4 décades, entre  $0.36\text{mm.s}^{-1}$  et  $36\text{mm.s}^{-1}$ . Les profils d'un kaolin de diamètre  $2\text{cm}$  à des vitesses de  $0.36\text{mm.s}^{-1}$  et  $36\text{mm.s}^{-1}$  sont montrés sur la figure 3.17. La goutte est plus allongée à  $36\text{mm.s}^{-1}$  qu'à  $0.36\text{mm.s}^{-1}$ . La variation de la forme de la goutte avec la vitesse sera discutée en détail dans le chapitre suivant. Ici, on note simplement que la vitesse de sortie, comme le diamètre, impacte la forme du filament.

Nous traçons ensuite les courbes d'écoulement à partir des données du pincement pour toutes ces vitesses et diamètres de buse (figure 3.18). Chaque courbe est tracée en moyennant les résultats d'au moins 3 extrusions aux mêmes paramètres. L'ensemble des courbes d'écoulement ainsi tracées se superpose sur une unique courbe maîtresse. Malgré les différences observées sur les profils, et malgré les différences sur les courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  en dehors du pincement, les résultats au niveau du pincement ne dépendent ni du diamètre, ni de la vitesse d'extrusion. Cela montre que le comportement capturé au

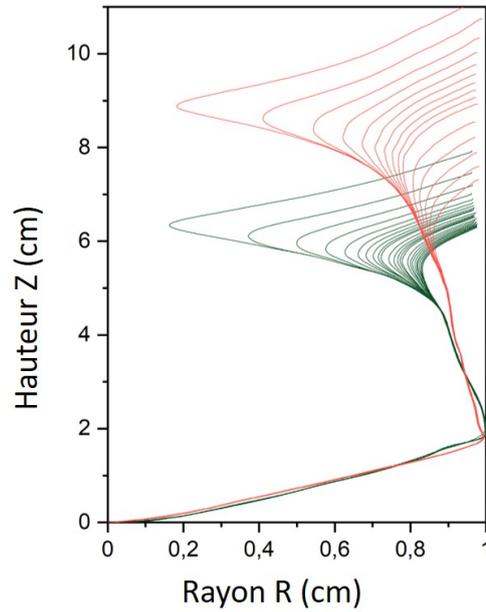


FIGURE 3.17 – Profils de filaments de kaolin à  $D_0 = 2\text{cm}$ , extrudés à  $0.36\text{mm.s}^{-1}$  (en vert) et  $36\text{mm.s}^{-1}$  (en rouge)

niveau du pincement est bien toujours le même, et, comme suggéré dans la section 3.2.1, nous en concluons que l'écoulement est élongationnel au point de pincement.

En étudiant les valeurs du cisaillement au niveau du pincement, nous avons trouvé qu'il pouvait y avoir une erreur sur le taux de déformation élongationnel jusqu'à 40%. Mais finalement, le fait de tracer un grand nombre de courbes permet de lisser cette erreur. Avec ces tracés, on considère que l'erreur finale sur le tracé de la courbe maîtresse est simplement l'écart type entre les courbes aux différents diamètres et aux différentes vitesses. Dans ce cas, pour le kaolin, on trouve que l'écart entre les données est de + ou - 10%.

La courbe maîtresse en élongation est bien représentée pour le kaolin par une équation de type Heschel-Bulkley. Elle est construite en faisant le meilleur fit de la loi de comportement pour l'élongation pure donnée par l'équation 1.21, et est tracée en bleu sur la figure 3.18. Cette expression est comparée à la même équation mais avec les valeurs de  $\tau_c$ ,  $K$  et  $n$  obtenues par les essais de cisaillement (section 2.3), dont la courbe est tracée en pointillés rouges sur la figure 3.18. Le fit bleu sur les données d'extrusion correspond à peu près à la courbe rouge en multipliant les données de contrainte par 1.5. En particulier, la prolongation de la courbe maîtresse amène à un seuil en élongation

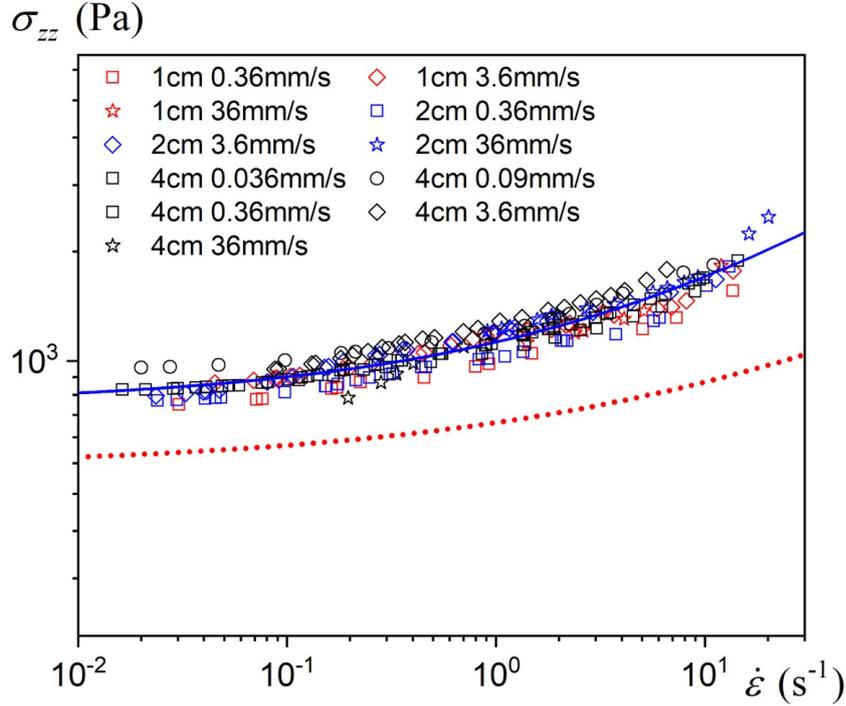


FIGURE 3.18 – Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  du kaolin à partir des données du pincement, à des vitesses et diamètres variés. La courbe bleue est un fit du modèle de HB en élongation (équation 1.21) avec les paramètres  $\tau_c = 448Pa$ ,  $K = 157Pa \cdot s^n$  et  $n = 0.4$ . La courbe rouge correspond à la même équation 1.21 tracée avec les données de la rhéométrie en cisaillement ( $\tau_c = 309Pa$ ,  $K = 80Pa \cdot s^n$  et  $n = 0.33$ ).

qui vaut environ 1.5 fois le modèle de HB 3D, c'est-à-dire environ  $1.5 * \sqrt{3}$  fois le seuil en cisaillement. Aux taux de déformation supérieurs à  $5s^{-1}$  le fit s'éloigne un peu plus de la courbe du modèle HB 3D.

### 3.2.3 Courbes d'écoulement en élongation de l'émulsion et du gel de carbopol

Grâce à cette analyse détaillée sur le kaolin, il est possible d'obtenir les courbes d'écoulement extensionnelles de plusieurs fluides à seuil de manière plus directe que la procédure complète développée au cours de ce chapitre. À partir d'un film, on peut concentrer l'analyse directement sur les points autour du pincement. Si l'importance du cisaillement est assez faible, ce qui est visible sur un graphe  $\alpha(\beta)$ , alors la courbe  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  se trace directement à partir des données du pincement. Nous avons réalisé cette pro-

cédure pour l'émulsion et le carbopol. Les courbes d'écoulement élongationnelles ainsi construites sont montrées sur les figures 3.19 et 3.20.

Pour un diamètre donné, les données de l'émulsion sont très similaires aux différentes vitesses. Cependant, ces données construisent deux courbes maîtresses, correspondant à chaque diamètre. La courbe maîtresse à  $D_0 = 1\text{cm}$  est essentiellement la courbe maîtresse à  $D_0 = 2\text{cm}$  translatée d'environ 15Pa vers le bas. Comme cette émulsion est stable sur plusieurs semaines, il ne nous semble pas qu'elle ait pu évoluer entre les deux essais à 1 et 2cm, faits à seulement un jour d'intervalle. La raison pourrait être que la tension de surface joue un rôle dans la dynamique de la rupture de cette émulsion. En effet, nous avons pu négliger la tension de surface lorsque  $\sigma_c * R_0 \gg \gamma$  (voir section 3.1.3). Pour le kaolin, cette condition est remplie pour tous les paramètres de diamètre ou de vitesse utilisés au-dessus. Pour l'émulsion, un diamètre de 1cm implique que  $\sigma_c * R_0 = 6.4 * \gamma$  en prenant  $\gamma$  la tension de surface de l'eau. Des effets de tension de surface pourraient donc commencer à jouer un rôle à 1cm. Pour cette raison, nous considérons que les données des courbes d'écoulement construites avec la diamètre  $D_0 = 2\text{cm}$  fournissent a priori la courbe d'écoulement élongationnelle de l'émulsion étudiée. Cette courbe est comparée à la courbe donnée par le modèle HB 3D et construite avec les données des essais de cisaillement, en pointillés rouges sur la figure 3.19. Comme pour le kaolin, la courbe maîtresse des données d'extrusion à  $D_0 = 2\text{cm}$  est environ 1.5 fois supérieure à celle du modèle, sauf aux plus forts taux de déformation, où le rapport de la contrainte sur le taux de déformation augmente plus rapidement en élongation qu'en cisaillement.

Concernant le carbopol, aux faibles taux de déformation, le rapport des contraintes entre les données d'extrusion et les données du modèle 3D reste égal à 1.5. Mais dès que les taux de déformations dépassent quelques  $s^{-1}$ , ce rapport augmente de manière importante. Autrement dit, la viscosité apparente du gel de carbopol est plus importante en élongation qu'en cisaillement, et cette augmentation de la viscosité, repérée aussi sur le kaolin et l'émulsion aux forts taux de déformation, est particulièrement plus marquée pour le carbopol que pour le kaolin et l'émulsion. Les polymères contenus dans le gel de carbopol pourraient être une raison de la forte résistance apparente du carbopol à l'élongation à grande vitesse.

En conclusion, le kaolin, l'émulsion et le gel de carbopol montrent des propriétés d'écoulement en élongation similaires tant que le taux de déformation élongationnel reste inférieur à plusieurs  $s^{-1}$ . Dans ce cas, la courbe d'écoulement en élongation est toujours environ  $1.5 * \sqrt{3}$  fois au-dessus de la courbe d'écoulement en cisaillement, quel que soit le fluide à seuil étudié. La robustesse de ce résultat malgré les types de matériaux

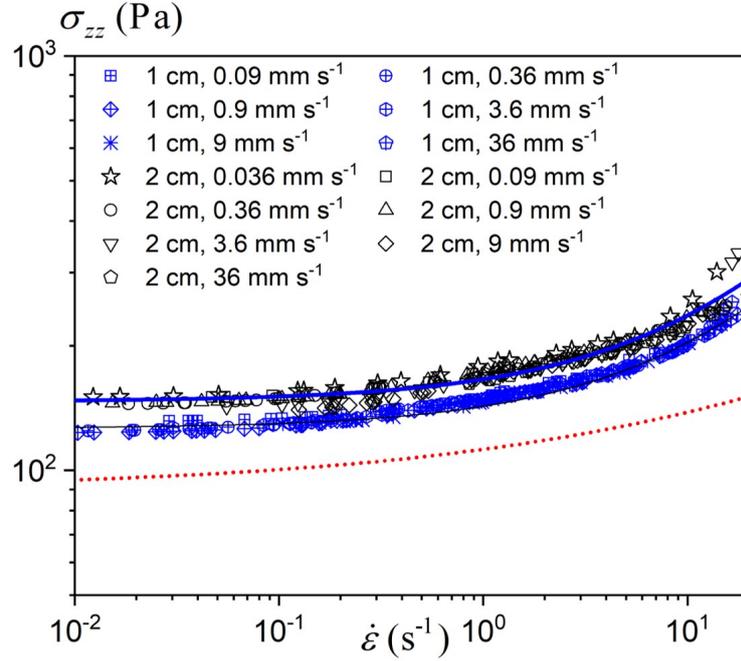


FIGURE 3.19 – Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  de l'émulsion à partir des données du pincement, à des vitesses et diamètres variés. La courbe bleue est un fit du modèle de HB en élongation (équation 1.21) avec les paramètres  $\tau_c = 85Pa$ ,  $K = 7.6Pa.s^n$  et  $n = 0.67$ . La courbe rouge correspond à la même équation 1.21 tracée avec les données de la rhéométrie en cisaillement ( $\tau_c = 52Pa$ ,  $K = 10.8Pa.s^n$  et  $n = 0.33$ ).

utilisés suggère qu'il y a quelque chose dans le mécanisme d'élongation des fluides à seuil que le critère de Von Mises ne capture pas.

### 3.3 Rhéométrie extensionnelle du domaine solide

Dans la section 3.2.2, on a montré que la section du pincement était soumise à une élongation à tous les temps de l'extrusion. On a utilisé cette information pour étudier les propriétés élongationnelles en écoulement, mais il est aussi possible d'obtenir des informations sur les propriétés élongationnelles du domaine solide. Si la contrainte normale qui s'applique sur la section du pincement est inférieure au seuil, cette section arrête de se déformer une fois qu'elle a passé le pincement. Alors, une relation entre la contrainte gravitaire et la déformation radiale, finie, est faisable. En fait, tant que le seuil n'est dépassé nulle part dans le filament, l'ensemble des sections sous le pincement est passé à un temps antérieur par le pincement et a été déformée définitivement de manière élongationnelle. Il en résulte que le profil du filament sous le pincement fournit directement

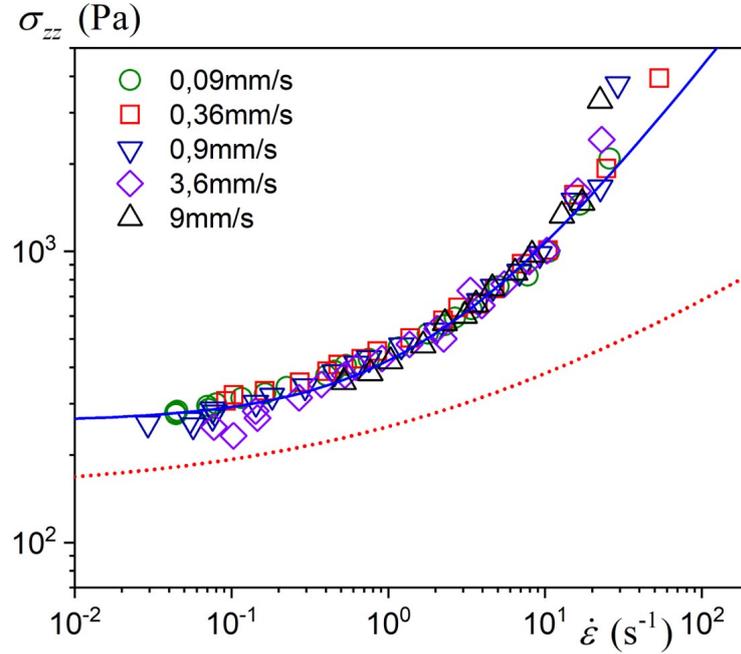


FIGURE 3.20 – Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  du carbopol à partir des données du pincement, à des vitesses et diamètres variés. La courbe bleue est un fit du modèle de HB en élongation (équation 1.21) avec les paramètres  $\tau_c = 150Pa$ ,  $K = 65Pa.s^n$  et  $n = 0.7$ . La courbe rouge correspond à la même équation 1.21 tracée avec les données de la rhéométrie en cisaillement ( $\tau_c = 86Pa$ ,  $K = 48Pa.s^n$  et  $n = 0.36$ ).

une courbe contrainte normale vs déformation élongationnelle.

Il n'est en revanche pas direct d'obtenir une courbe complète du comportement solide, de la déformation nulle jusqu'à la déformation seuil. Le dépassement du seuil entraîne un écoulement au-dessus et en-dessous du pincement, et des composantes de cisaillement s'y développent, donc un profil du filament en écoulement risquerait de surévaluer les déformations près du seuil en élongation en y ajoutant des déformations visqueuses. De plus, au niveau du point de pincement, la courbure du profil du filament change de sens, de manière à ce que la section au niveau du pincement soit cylindrique. Ainsi, la déformation juste sous le pincement ne se fait pas librement, car elle est en partie dictée par son accrochage à la buse. Enfin, la goutte précédente ayant donné une forme de cône inversé en bas de la goutte, les déformations et la contrainte sont non nulles au premier point de mesure, où le rayon est maximal. Il serait possible d'extrapoler les courbes solides jusqu'au seuil bien identifié par l'étude du chapitre 4. Mais cela rajouterait une incertitude de plus sur la courbe contrainte vs déformations. Pour ces raisons, l'étude de

ces déformations nous a semblé trop complexe à mettre en place de manière à avoir des résultats complets, mais nous a paru intéressante à mentionner tout de même, comme un complément de l'étude de la séparation.

## 3.4 Courbes d'écoulement en élongation du ciment

Le ciment est plus complexe que les autres fluides à seuil étudiés car ses propriétés évoluent au cours du temps. Sur les études de rhéométrie en cisaillement (section 2.4), on a vu notamment qu'il pouvait développer des forces normales importantes dues à un phénomène que nous avons attribué à du coincement, et que son seuil augmentait rapidement dès les premières secondes après l'arrêt de l'écoulement, puis plus lentement, lorsqu'il forme des produits d'hydratation, après plutôt plusieurs minutes de repos.

Pour pouvoir analyser les propriétés d'élongation du ciment, il faut avoir un point de comparaison sur des données en cisaillement tel que le ciment est dans un état de structuration proche dans les deux cas. Les différences mesurées seront alors liées au type d'écoulement et non à des états de structuration différents. Mais il n'est pas évident de connaître l'état du ciment au moment où il sort de la buse. Il s'est passé quelques minutes entre la fin de sa préparation et la sortie de la buse. Pendant ces quelques minutes, il a été cisailé dans des proportions inconnues au cours d'abord de son versement dans le cylindre, puis au cours de son extrusion, dans laquelle la section se réduit de 12cm de diamètre (cylindre) à 1cm de diamètre (buse). D'après RABIDEAU, MOUCHERONT, BERTRAND, RODTS, MÉLINGE et al. 2012, on considère toutefois que la réduction de section a induit un cisaillement suffisamment fort pour proposer que l'essai de cisaillement comparatif le plus approprié consiste en un précisaillement puis une rampe de contrainte dans une géométrie Vane. Mais par ailleurs, au vu de résultats détaillés dans la section 4.4, on suggère en plus qu'il peut y avoir un gradient de concentration en ciment qui se développe au cours de l'extrusion. Pour cette raison, nous avons choisi de faire des essais de cisaillement directement sur les gouttes récupérées après leur extrusion. De cette manière, la concentration en ciment est forcément la même dans l'extrusion et dans le Vane.

Comme les essais de rhéométrie en cisaillement ont été faits à taux de cisaillement imposé, la donnée qu'ils fournissent est essentiellement le seuil en cisaillement et pas la courbe d'écoulement complète. La comparaison des résultats d'élongation à la rhéométrie en cisaillement se fera donc dans le chapitre suivant (section 4.4) qui traite en particulier de la mesure du seuil en élongation. Ici, on montre seulement les courbes d'écoulement en élongation du ciment.

On commence par montrer une succession d'images d'une extrusion (figure 3.21, ciment  $E/C=0.45$  à  $3.6\text{mm/s}$ ). On remarque que le ciment s'étire beaucoup avant de casser, en formant un filament très fin, un peu comme pour le carbopol. On montre ensuite les courbes d'écoulement obtenues sur plusieurs extrusions où le diamètre de buse vaut toujours  $D_0 = 1\text{cm}$ , mais la concentration en ciment varie ( $E/C$  entre 0.35 et 0.45) ainsi que la vitesse du filament de ciment en sortie de buse (entre  $0.36\text{mm/s}$  et  $9\text{mm/s}$ )(figure 3.21). À cause du développement d'un gradient de concentration au cours de l'extrusion, les résultats aux différentes concentrations  $E/C$  données ici ainsi qu'aux vitesses de sortie ne sont pas comparables. Les données de concentration et de vitesse sont juste utilisées pour identifier une extrusion. On construit alors les courbes d'écoulement en élongation en faisant la moyenne des courbes de 3 gouttes de l'extrusion.

Les données sont plus bruitées que pour les autres fluides à seuil. Elles prennent néanmoins la forme attendue d'un fluide de Herschel-Bulkley, et peuvent être fittées par l'équation 1.21, avec une variation sur les données d'environ 15%.

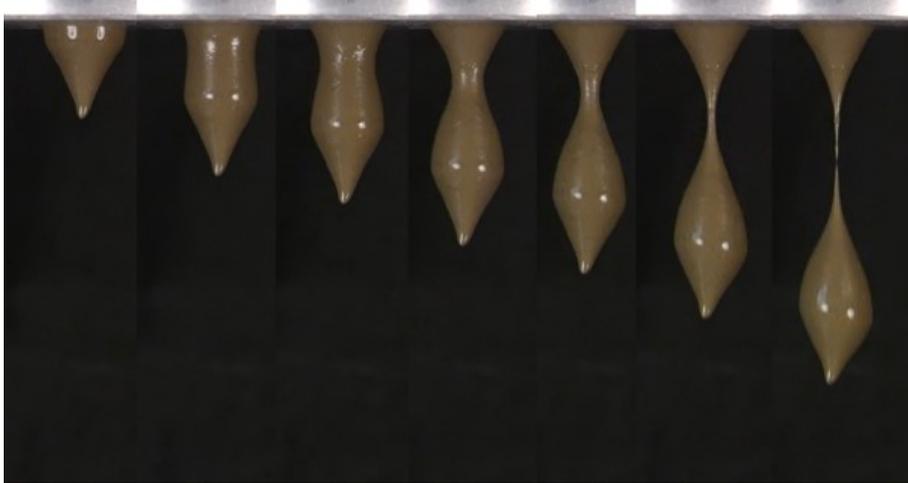


FIGURE 3.21 – Filament de ciment ( $E/C=0.45$ ) extrudé par une buse de diamètre  $D_0 = 1\text{cm}$  à  $\bar{V}_{sortie} = 3.6\text{mm.s}^{-1}$  à différents temps de son extrusion

### 3.5 Conclusion sur les courbes d'écoulement en élongation

Pour déterminer les lois de comportement élongationnelles des fluides à seuil, nous avons développé une approche rhéométrique, c'est-à-dire sans aucun a priori sur le com-

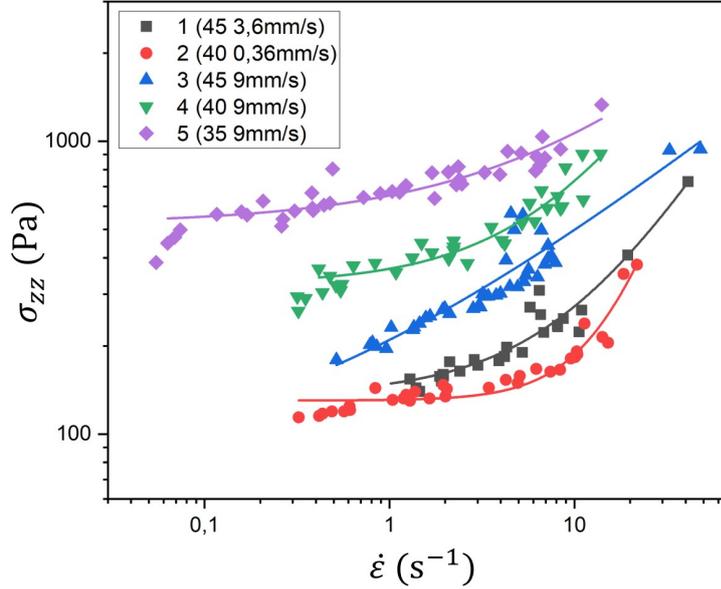


FIGURE 3.22 – Courbes  $\sigma_{zz}(\dot{\epsilon})$  du ciment à partir des données du pincement, pour 5 extrusions à des concentrations et vitesses variées. Les courbes colorées sont des fits du modèle de HB en élongation (équation 1.21) pour chaque extrusion

portement des fluides à seuil (à part qu'ils ont un seuil). Cette rhéométrie élongationnelle se fait avec des moyens relativement simples puisqu'il suffit de filmer l'extrusion d'un filament de fluide à seuil et d'analyser les images a posteriori. Nous avons principalement étudié le domaine liquide, pour lequel nous avons observé qu'il développait du cisaillement de manière importante dans une zone autour du pincement. Au niveau du pincement en revanche, nous avons trouvé que le cisaillement était faible. Nous avons alors fait varier les conditions d'écoulement en changeant les vitesses de sortie et les diamètres. Nous avons observé que les données de contrainte vs taux de déformation issues du pincement ne variaient pas avec les conditions, ce qui a confirmé que les données du pincement mesuraient bien une propriété intrinsèque du matériau, l'élongation. Pour les trois fluides à seuil simples étudiés dans un premier temps (kaolin, émulsion et gel de carbopol), les courbes d'écoulement en élongation sont environ  $1.5 * \sqrt{3}$  fois au-dessus de celles en cisaillement tant que le taux de déformation élongationnel reste en dessous de quelques  $s^{-1}$ . A des vitesses supérieures, le rapport devient légèrement supérieur pour le kaolin et l'émulsion, et clairement plus important pour le carbopol. Il est plus difficile d'avoir une analyse des propriétés du ciment dans ce chapitre, car nous n'avons pas de

### 3.5. CONCLUSION SUR LES COURBES D'ÉCOULEMENT EN ÉLONGATION

---

point de comparaison avec des données en cisaillement. La comparaison sera faite pour le seuil dans la section 4.4.

## Chapitre 4

# Mesure du seuil en élongation par un test simple

En poursuivant l'étude du chapitre 3, nous montrons dans ce chapitre qu'il est possible de mesurer le seuil de fluides à seuil simples en élongation avec la mesure de la masse d'une goutte et l'estimation du rayon de filament critique de transition de l'état solide à l'état liquide. Cette méthode est ensuite utilisée pour mesurer le seuil du ciment en élongation.

### 4.1 Évolution du point de pincement

Dans la section 3.1, nous avons décrit en détail ce qu'il se passe dans les différentes zones d'un filament au cours de son extrusion. La base du cône inversé a un diamètre  $D_{max}$  proche de  $D_0$  mais légèrement inférieur car la masse du cône applique une traction non nulle dessus. Quand une nouvelle section de filament est extrudée, elle sort de la buse avec un diamètre  $D_0$ . Le diamètre de la section diminue jusqu'à un minimum qui peut être atteint seulement à une certaine distance de la buse. Il existe alors un temps de l'extrusion où la contrainte qui s'impose à ce minimum vaut la contrainte seuil. Comme nous avons identifié que la section au niveau du pincement est à ce moment sollicitée principalement en élongation, la contrainte qui s'applique sur elle est la contrainte seuil en élongation. Lorsque le terme d'accélération n'est pas encore remarquable, la contrainte normale s'écrit

$$\sigma_{zz} = \frac{mg}{\pi R^2(Z, t)} \quad (4.1)$$

Avec  $m = \int_0^Z \rho \pi R^2(z, t) dz$  la masse de matériau situé sous la hauteur  $Z$ .

On considère que l'extrusion est très lente. Cette considération est particulièrement utile pour distinguer plus clairement les régimes liquide et solide. Pour faciliter la lecture, on réutilise la figure 3.1 dans ce chapitre (figure 4.1). Suivons la section de particules qui est située au niveau du rayon minimum (pincement) pile lorsque la contrainte qui s'applique sur le pincement vaut la contrainte seuil. Nous l'appelons section "seuil". À ce temps noté  $t_{seuil}$ , la déformation de la section "seuil" est la déformation seuil en élongation. Comme on considère une extrusion lente, on considère qu'à un temps proche  $t_{seuil} + dt$ , la section au-dessus de la section "seuil" n'est pas descendue assez pour atteindre elle aussi le seuil. En revanche, sur ce temps  $dt$ , la section "seuil" a dépassé le seuil, donc elle a commencé à s'écouler. La masse sous la section "seuil" n'a pas varié mais par contre sa surface a diminué, donc la contrainte a augmenté, induisant un écoulement plus rapide. Notre question est de savoir comment évolue cette section "seuil" dans la suite de l'écoulement. Nous avons relevé dans la section 3.1 que l'écoulement de la section au point de pincement, noté B sur la figure 4.1, entraîne la poursuite des déformations du matériau en-dessous et au-dessus, de manière symétrique. Or, en-dessous, à moins qu'il n'y ait du fluage, le matériau devait être dans son domaine solide, en ayant déjà atteint sa déformation maximale. Comme la déformation continue de se développer, c'est que le matériau est passé dans le régime liquide. Nous avons donc conclu que toute une région, autour de B, est en écoulement. Cela précise notre question de savoir comment évolue la section "seuil". Si cette section de particules reste la section du rayon minimal tout au long de la séparation, la masse finale de la goutte séparée sera la même que celle sous B à  $t_{seuil}$ . Ce n'est pas évident car il y a tout un domaine qui est liquide. Mais si c'est le cas, mesurer la masse d'une goutte permettra d'accéder au seuil en élongation. Pour vérifier cela, nous proposons de suivre l'évolution du volume sous pincement, grâce à la méthode d'analyse d'images développée pour récupérer les profils des filaments.

### **Suivi du volume sous la section "seuil"**

Au lieu de suivre l'évolution du volume sous le pincement, qui implique de repérer le rayon minimal à chaque temps, nous aurions aussi pu suivre la position des particules de la section "seuil" et voir comment les particules se déplacent. Cela aurait été possible si nous avions eu des particules traçables ou bien si nous utilisons un matériau avec des bulles fines qui quadrillent le volume de la goutte. La série d'images de carbopol de la figure 4.2 est particulièrement illustratrice de cette idée, car une bulle s'est coincée juste sur la section où la goutte s'est séparée. On peut regarder l'évolution de cette bulle pour avoir une idée de la façon dont la section du pincement à  $t_{seuil}$  a évolué. Par un effet de lumière, la section du pincement est bien marquée (trait sombre horizontal

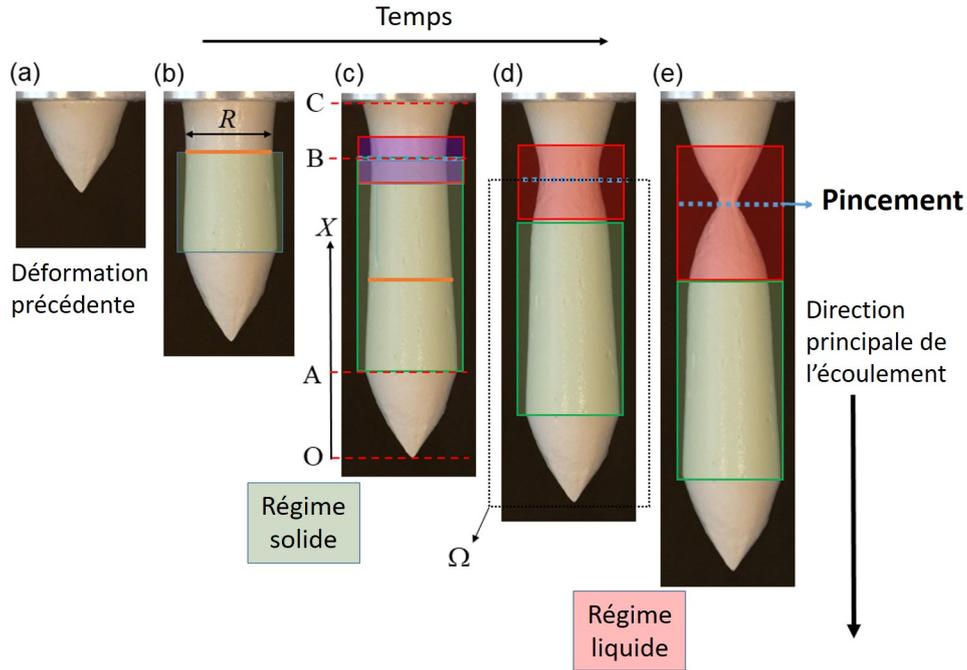


FIGURE 4.1 – Images successives du filament (ici kaolin,  $D_0 = 2\text{cm}$ ) au cours de son extrusion. (a) cône formé par le détachement de la goutte précédente, (b) et (c) développement du régime solide (vert), (d) et (e) développement du régime liquide (rouge). Une section de fluide est marquée en orange pour être suivie au cours de l'extrusion (images (a) et (b)). Le pincement est repéré en pointillés bleus sur les images (c), (d) et (e).

légèrement courbe au niveau du pincement). Sur la première image, le pincement semble être un peu au-dessus de la moitié de la bulle. Cette observation tient tout au long de la séparation, et, sur la dernière image, la bulle, très allongée, se coupe en deux. On note aussi que les autres petites bulles sous le pincement restent bien à leur place et ne se déforment pas, ce qui montre qu'elles restent coincées dans une matrice qui, elle, est solide.

### Suivi du volume sous le rayon minimal

Nous proposons plutôt de suivre l'évolution du volume sous le pincement à partir des profils, c'est-à-dire de repérer le rayon minimal à chaque temps, et de calculer le volume en dessous. Nous commençons par le kaolin, et nous étudierons l'émulsion et le carbopol ensuite. On montre les variations de volume de plusieurs kaolins à des concentrations volumiques de 23, 27 et 31% (figure 4.3). En cohérence avec la discussion au-dessus, la vitesse de sortie est faible ( $0.36\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$  pour 23 et 27% et  $0.9\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$  pour 31%). Une

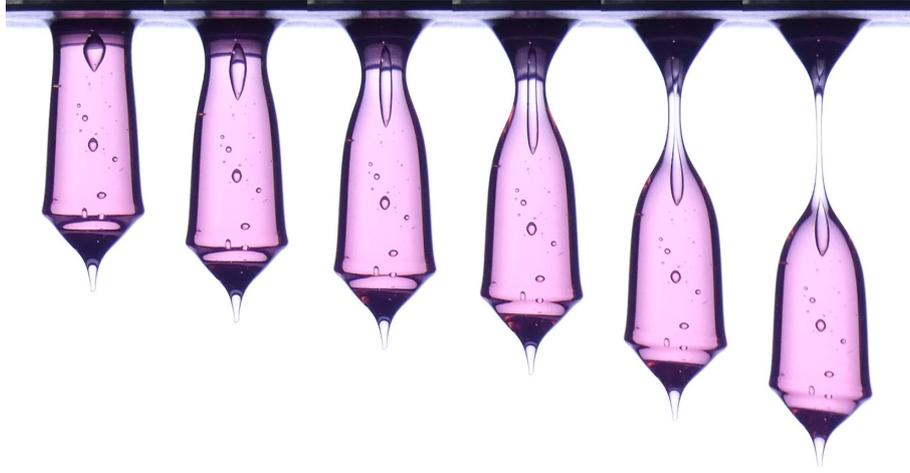


FIGURE 4.2 – Filament de carbopol extrudé par une buse de diamètre  $D_0 = 1\text{cm}$  à  $\bar{V}_{\text{sortie}} = 0.36\text{mm.s}^{-1}$  à différents temps de son extrusion

goutte met alors entre 1 et 3min à être extrudée entièrement. Ces 3 extrusions sont faites avec une buse de 2cm de diamètre. On trace en ordonnée le volume situé en-dessous de la section de pincement, et en abscisses le rayon de la section de pincement. On précise que l'axe des ordonnées est en échelle logarithmique, et l'axe des abscisses suit une échelle linéaire. Lorsque le temps, et donc l'écoulement, avance, le rayon du pincement diminue, donc les rayons aux premiers temps sont à droite sur la figure et valent près de 1 et les rayons aux derniers temps avant la séparation sont à gauche. Le premier point peut être relevé quand la courbure du filament devient visible avec nos outils d'analyse. Avant cela, le profil est très plat, il est difficile de placer sans trop d'imprécisions la position du pincement. On arrive à donner une première position de pincement pour un volume valant environ la moitié du volume final de la goutte. À cet endroit, le rayon minimal vaut environ  $0.99 * R_0$  pour les 3 courbes de la figure 4.3. Pour chaque courbe, on relève d'abord une augmentation importante du volume pour une faible baisse du rayon. Puis la courbe change de tendance, elle s'aplatit, et forme un plateau où le rayon diminue sans que le volume ne change. Comme le volume ne varie pas ou très peu, c'est que la section du pincement reste quasiment la même au cours de la séparation. Pour chaque courbe, on note le rayon à partir duquel le volume arrête de varier. Il marque le début de l'écoulement. Ce rayon doit donc être le rayon associé à la déformation seuil du kaolin. Il vaut environ 0.83 pour le kaolin le moins concentré, à  $\phi = 23\%$ , et 0.88 pour les kaolins à 27 et 31%. Ce rayon critique est déterminé avec une certaine erreur, car la transition entre les deux régimes d'évolution du volume sous le pincement n'est pas précisément marquée. L'erreur sur le rayon critique est d'environ 5%, ce qui entraîne une erreur d'environ 10% sur la contrainte normale.

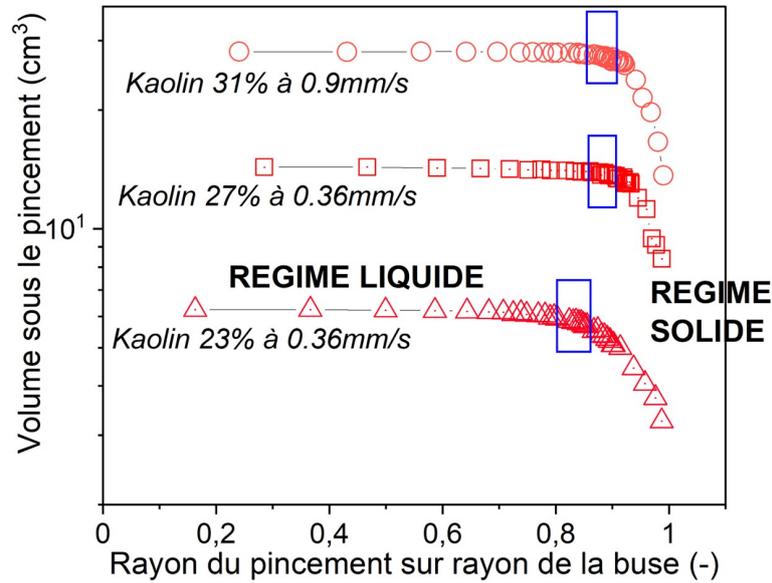


FIGURE 4.3 – Volume sous le pincement vs rayon du pincement sur rayon de la buse, pour le kaolin extrudé à vitesse faible, à plusieurs concentrations. Le rayon critique de transition entre les régimes et son incertitude sont repérés par un rectangle bleu.

### Influence du diamètre de la buse

On a montré dans le chapitre 3 que malgré son impact sur la forme de la goutte et les composantes de cisaillement, le diamètre n'avait pas d'influence sur la courbe d'écoulement élongationnelle. Il est important d'étudier l'influence du diamètre de la buse ici, en particulier parce que l'étude se fait maintenant directement à partir du profil. Nous avons extrudé des filaments de kaolins à 27% à des diamètres de 1, 2 et 4cm, à une vitesse de sortie de  $3.6mm.s^{-1}$  (figure 4.4). Cette vitesse est un peu supérieure aux vitesses précédentes. Sur les courbes, cela se traduit par une transition du régime liquide au régime solide moins marquée qu'aux vitesses faibles. En particulier, le rayon de transition est plus incertain ici et semble déplacé vers la gauche. En revanche, comme toutes les extrusions sont faites à la même vitesse, comparer la forme de la transition reste pertinent. Notons qu'en faisant des expériences similaires à 23% et 31%, nous ne sommes pas parvenus à extruder des gouttes de 4cm de diamètre pour la concentration de 23%. On représente les volumes en les divisant par le rayon de la buse au carré, de

manière à avoir une estimation de l'évolution en termes de contrainte. Les courbes sont similaires, avec une légère augmentation de  $V/R_0^2$  avec le diamètre. Finalement, on retient une augmentation de  $V/R_0^2$  final de la goutte avec le diamètre d'environ 15% entre 1 et 4cm. En revanche, la transition entre les régimes se fait pour des valeurs de rayon proches. Après la transition, le volume évolue toujours très peu quel que soit le diamètre.

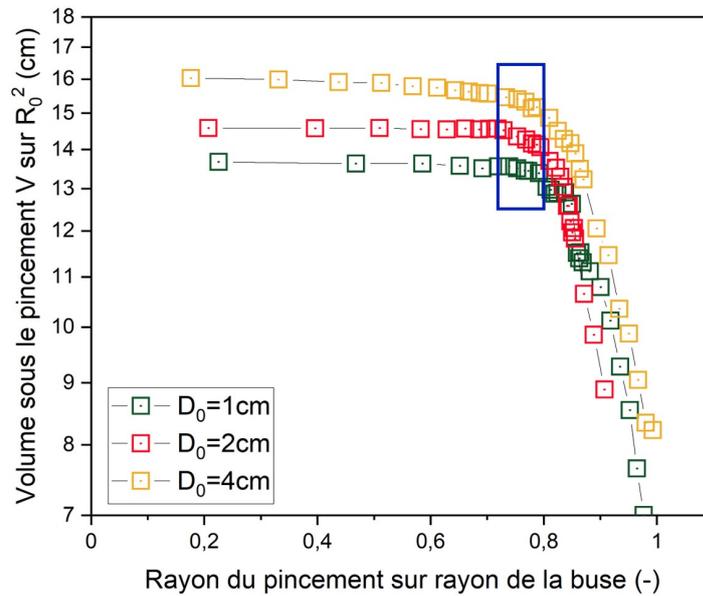


FIGURE 4.4 – Volume sous le pincement vs rayon du pincement sur rayon de la buse, en faisant varier le diamètre de 1 à 4cm pour un kaolin à  $\phi = 27\%$  extrudé à 3.6mm/s. Le rayon critique de transition entre les régimes et son incertitude sont repérés par un rectangle bleu.

### Emulsion

L'émulsion montre une transition plus abrupte vers son plateau que le kaolin. Elle montre aussi un rayon seuil plus élevé, d'environ  $0.93 * R_0$ , c'est-à-dire une déformation seuil plus faible que le kaolin. On le voyait bien sur la forme de la goutte, qui est peu amincie dans le domaine solide. En revanche, c'est étonnant par rapport aux résultats de fluages en cisaillement. Sur la courbe de fluage de l'émulsion (voir section 2.2), le seuil en cisaillement, d'environ 55Pa, était atteint pour une déformation entre 35 et 60%. Cette déformation est supérieure à celle du kaolin en fluage (environ 20%), mais c'est l'inverse pour l'élongation. Cela montre à quel point avoir des microstructures différentes

(ici, suspension vs émulsion) implique des écoulements différents. Cela montre aussi que dans ces conditions, il est remarquable de trouver des rapports de comportements en élongation vs cisaillement similaires pour ces différents matériaux.

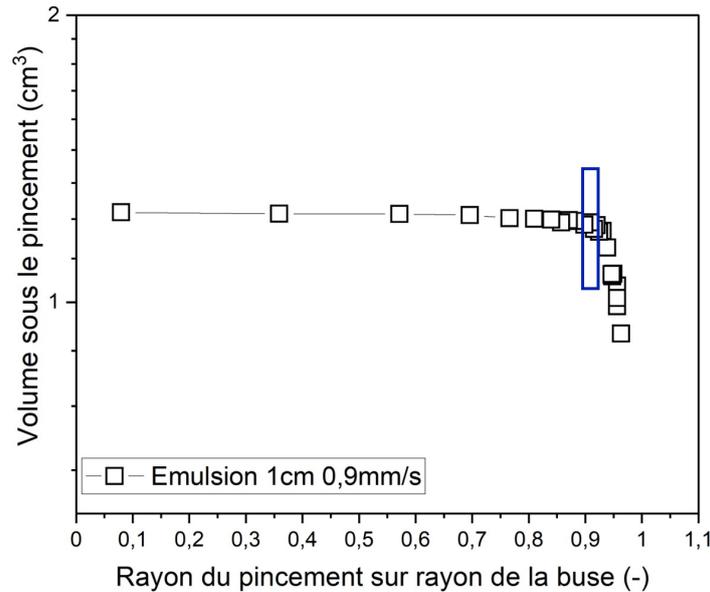


FIGURE 4.5 – Volume sous le pincement vs rayon du pincement sur rayon de la buse, pour l'émulsion à  $D_0 = 1\text{cm}$  extrudée à  $0,9\text{mm/s}$ . Le rayon critique de transition entre les régimes et son incertitude sont repérés par un rectangle bleu.

#### Gel de carbopol

Le plateau du gel de carbopol est atteint pour un rayon d'environ 0,78 (figure 4.6). Le carbopol se déforme donc plus que le kaolin et l'émulsion avant d'atteindre son seuil en élongation. Dans les essais de fluage en cisaillement (section 2.2), on a vu que les déformations du carbopol pouvaient continuer d'augmenter à une contrainte fixée proche du seuil, donc proche de la zone de transition sur la figure 4.6. Cet effet devrait augmenter avec la diminution de la vitesse d'extrusion, qui est justement la condition dans laquelle notre étude se place jusqu'ici. Sans moyen de l'évaluer, cet éventuel effet de fluage en élongation sera donc négligé. Le carbopol s'élargit aussi légèrement en sortie de buse, ce qui lui donne un rayon maximal supérieur au rayon de la buse d'environ 3%. Cette augmentation semble n'avoir lieu que sur quelques millimètres au-dessus de la base de

la goutte, et on choisit de la négliger dans l'étude de l'évolution du volume.

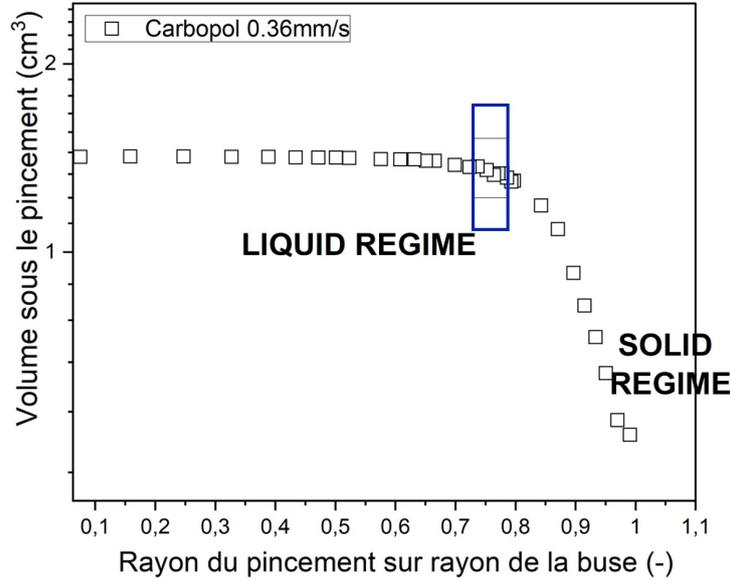


FIGURE 4.6 – Volume sous le pincement vs rayon du pincement sur rayon de la buse, pour le carbopol à  $D_0 = 1\text{cm}$  extrudé à  $0.36\text{mm/s}$ . Le rayon critique de transition entre les régimes et son incertitude sont repérés par un rectangle bleu.

Pour ces extrusions aux faibles vitesses d'extrusion, les trois fluides à seuil simples étudiés (kaolins à différentes concentrations, émulsion et gel de carbopol) montrent un plateau de leur valeur du volume sous le pincement. Le diamètre a peu d'impact sur la valeur du volume de la goutte finale (moyennant une division par  $R_0$ ) et sur la valeur du rayon au début du plateau. L'absence de variation du volume après le point de transition des régimes indique que le pincement est décidé dès le début du plateau. À ce moment, la contrainte au niveau du pincement est égale à la contrainte seuil. Comme le volume, donc la masse, reste constant au cours du détachement, la contrainte seuil  $\sigma_c$  peut aussi être obtenue en pesant la masse de la goutte qui s'est détachée. Son expression est donnée par

$$\sigma_c = \frac{m_{goutte}g}{\pi R_c^2} \quad (4.2)$$

où  $m_{goutte}$  est la masse de la goutte détachée et  $R_c$  est le rayon marquant le transition entre les régimes solide et liquide, déterminé sur les courbes de volume sous le pincement vs rayon du pincement.

## 4.2 Impact de la vitesse de sortie

Dans la section précédente, nous avons directement considéré une extrusion à une vitesse très faible. Cela a impliqué qu'entre le moment où le seuil était atteint et le moment de rupture de la goutte, la quantité de matériau sorti de la buse était considérée comme nulle. Ce n'est jamais exactement le cas, même aux vitesses d'extrusions que nous avons appelées "faibles", qui sont de l'ordre de  $0.1\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Suivons une extrusion un peu plus rapide, et considérons la section "seuil" qui atteint la contrainte seuil à  $t$ . A  $t+dt$ , elle a commencé à s'écouler, donc son diamètre s'est réduit un peu plus et sa contrainte a augmenté. Cette section suit les mêmes déformations que pour la vitesse d'extrusion lente. En revanche, sur le temps  $dt$ , la section au-dessus a cette fois eu le temps de descendre assez pour s'affranchir de l'effet de la buse qui maintenait son diamètre au-dessus du minimum. Elle a donc eu le temps d'atteindre le seuil. Sauf que comme elle est au-dessus de la section précédente, la force qui s'applique sur elle est plus importante. On peut alors se demander si la contrainte qui s'applique sur cette section est plus importante que celle qui s'applique sur la section "seuil". Juste au-dessus du seuil, la vitesse d'écoulement du matériau est très faible, et elle augmente avec l'augmentation de la contrainte. Donc sur un temps court, la section "seuil" s'est peu déformée. Si la vitesse d'extrusion est suffisamment grande, plusieurs sections au-dessus peuvent avoir eu le temps de s'affranchir de l'effet la buse, de dépasser le seuil et donc d'avoir une contrainte plus importante que la section "seuil". Comme la section "seuil" est la première à avoir commencé à s'écouler, elle devrait être en avance en termes de déformations, donc de proximité à la rupture. Mais le taux de déformation augmente très vite avec une faible augmentation de la contrainte, donc les sections du dessus peuvent s'écouler plus vite, et finalement la rupture peut avoir lieu au niveau d'une des couches du dessus.

On peut visualiser cette idée en observant l'image de la goutte juste après sa rupture pour différentes vitesses d'extrusion. Les séries de gouttes montrées sont obtenues en faisant des extrusions à des vitesses de sortie comprises entre  $0.09\text{mm/s}$  et  $900\text{mm/s}$ . On peut noter que nous avons étendu la gamme de vitesses aux vitesses rapides par rapport à l'étude sur les courbes d'écoulement du chapitre 3 pour mieux saisir l'impact de la vitesse de sortie.

### Emulsion

On commence par montrer l'émulsion sur la figure 4.7. Clairement, la goutte s'allonge avec la vitesse de sortie, mais cette observation est à nuancer en fonction des vitesses.

Dans tout un premier domaine de vitesses, entre 0.09mm/s et 9mm/s, la forme de la goutte reste quasiment identique. Notre interprétation est que la vitesse de sortie n'est pas encore assez importante pour que la rupture ait lieu au-dessus de la première section en écoulement, c'est-à-dire que l'écoulement se fait encore selon la dynamique des vitesses "faibles". Du fait de notre choix de prendre 2 vitesses de sortie par décade, la longueur de la goutte semble évoluer très rapidement entre 36mm/s et 90mm/s. Dans la figure 4.8, on se concentre sur les vitesses transitoires pour lesquelles la goutte s'allonge. La goutte s'allonge progressivement entre 20mm/s et 360mm/s, où elle finit par atteindre un régime de filament continu. A 900mm/s, ce filament continu ne semble même plus se déformer dans l'optique de former une goutte, comme c'était encore le cas à 360mm/s. En regardant les images aux vitesses intermédiaires, on peut remarquer que la goutte séparée s'affine en s'allongeant. Si on regarde par exemple l'image à 140mm/s, la goutte encore accrochée à la buse a déjà été largement déformée sur toute sa hauteur par la goutte qui vient de se décrocher. Maintenant que la goutte s'est décrochée, la contrainte va diminuer (et passer en dessous du seuil) sur la partie basse de cette nouvelle goutte. Cette partie basse ne va plus se déformer. Par contre, la partie haute va s'écouler dès qu'une de ses sections sera passée au-dessus du seuil.

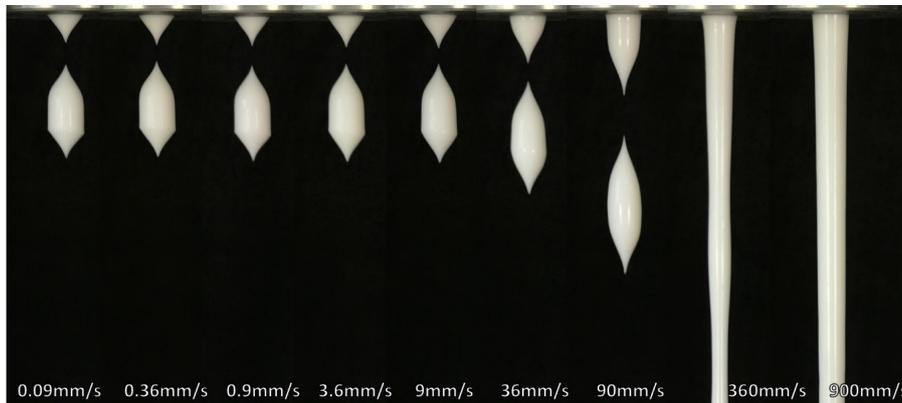


FIGURE 4.7 – Gouttes d'émulsion juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 900mm/s

### Suspension de kaolin à plusieurs concentrations

Pour le kaolin, la concentration volumique est variée entre 21% et 31%. La concentration de 21% est la concentration minimale en kaolin avec laquelle nous avons réussi à former des gouttes de 1cm de diamètre qui ne tombent pas de l'extrudeuse par gravité. Au-dessus de 31%, il devenait difficile de faire des mesures précises au rhéomètre en cisaillement, mais aussi d'extruder sans dépasser la limite de la cellule de force de l'ex-

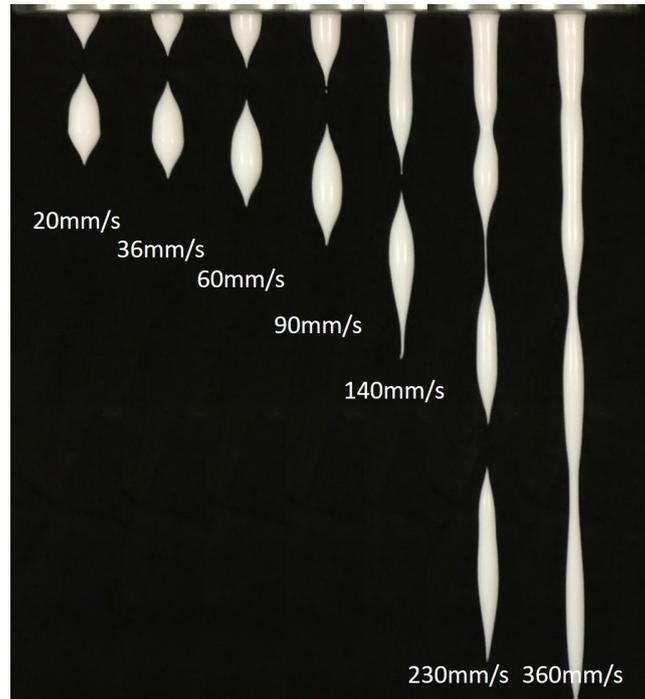


FIGURE 4.8 – Gouttes d’émulsion juste après séparation pour des vitesses entre 20mm/s et 360mm/s

trudeuse Instron (de 500N). On montre les séries d’images à toutes les vitesses (de 0.09 à  $900\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ) et à toutes les concentrations (figures 4.9 à 4.14). Les extrusions sont faites avec un diamètre de buse constant de 1cm. Pour chaque concentration, les gouttes ont des formes similaires dans le domaine de vitesses entre 0.09 et  $9\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ce domaine de vitesses est le même que celui de l’émulsion, ce qui suggère que les paramètres de vitesse décrivant la dynamique de l’écoulement sont proches pour l’émulsion et le kaolin. A la différence de l’émulsion, les gouttes de kaolin sont légèrement différentes entre elles entre 0.09 et  $9\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Les gouttes aux plus faibles vitesses sont légèrement plus petites, et elles ont une surface un peu moins lisse sur la portion où elles se sont écoulées. Cette observation est assez nette à 0.09 et  $0.36\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$  pour toutes les concentrations. Mis à part sur ce point, les gouttes entre 0.09 et  $9\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$  sont très similaires. Elles commencent à avoir des formes clairement différentes, plus allongées, à  $36\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$  et à  $90\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ . A  $360\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ , des instabilités de rupture semblent se former (visibles sur la figure 23% par exemple) car une grande partie du filament a une contrainte qui est supérieure au seuil, ce qui semble entraîner plusieurs points de pincement, et des ruptures un peu aléatoires.

## 4.2. IMPACT DE LA VITESSE DE SORTIE

---

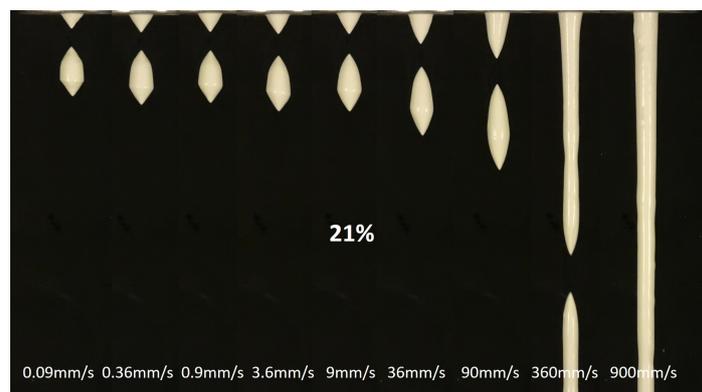


FIGURE 4.9 – Gouttes de kaolin à 21% juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 900mm/s

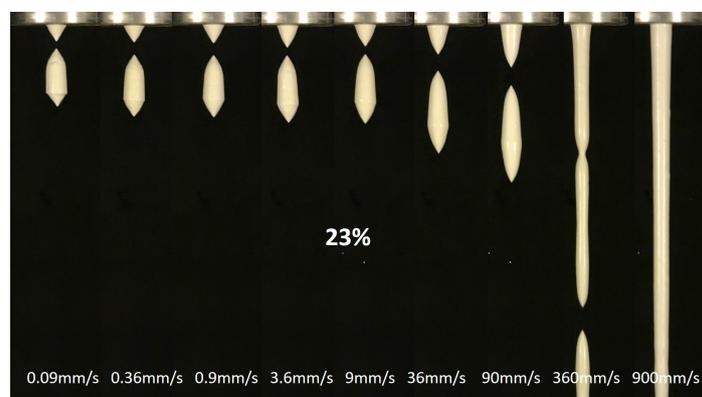


FIGURE 4.10 – Gouttes de kaolin à 23% juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 900mm/s

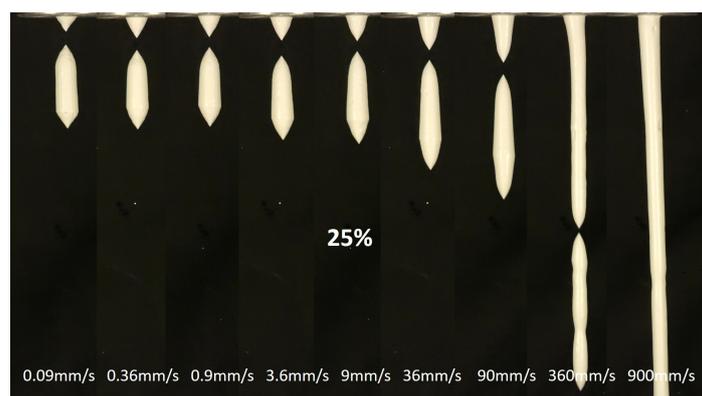


FIGURE 4.11 – Gouttes de kaolin à 25% juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 900mm/s

## 4.2. IMPACT DE LA VITESSE DE SORTIE

---

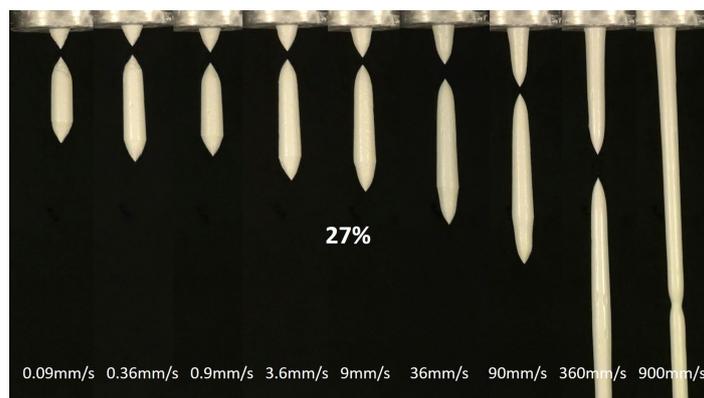


FIGURE 4.12 – Gouttes de kaolin à 27% juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 900mm/s



FIGURE 4.13 – Gouttes de kaolin à 29% juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 900mm/s

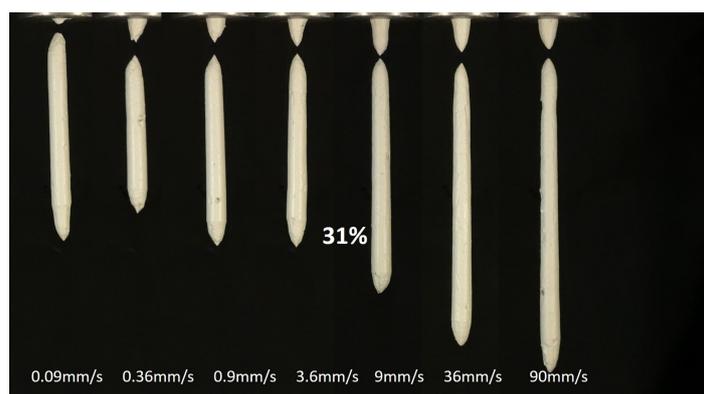


FIGURE 4.14 – Gouttes de kaolin à 31% juste après séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 90mm/s

### Gel de carbopol

Le carbopol montre une augmentation de sa longueur avec la vitesse plus marquée que le kaolin et l'émulsion (figure 4.15). Sur cette série, on montre la dernière image avant la rupture, et non la première image après, pour éviter d'étirer encore plus l'image. La goutte séparée ne change quasiment pas de forme, mais le filament très fin qui fait la jonction se coupe en deux et se rétracte comme un élastique, formant un cône similaire à celui du bas de la goutte. Cette fois, le domaine de vitesse "faibles" contient seulement les 3 premières gouttes, à  $0.09$ ,  $0.36$  et  $0.9\text{mm.s}^{-1}$ . La goutte à  $3.6\text{mm.s}^{-1}$  est sensiblement plus allongée que les précédentes. Les gouttes continuent de s'allonger jusqu'à  $360\text{mm.s}^{-1}$  où notre montage expérimental ne nous permet plus de capturer la rupture. On montre en complément une deuxième série d'images avec un fond lumineux qui permet d'obtenir les profils du carbopol par son ombre. Ces images sont beaucoup mieux résolues que les premières, et ont été utilisées pour étudier l'évolution du volume sous le pincement dans la section précédente.

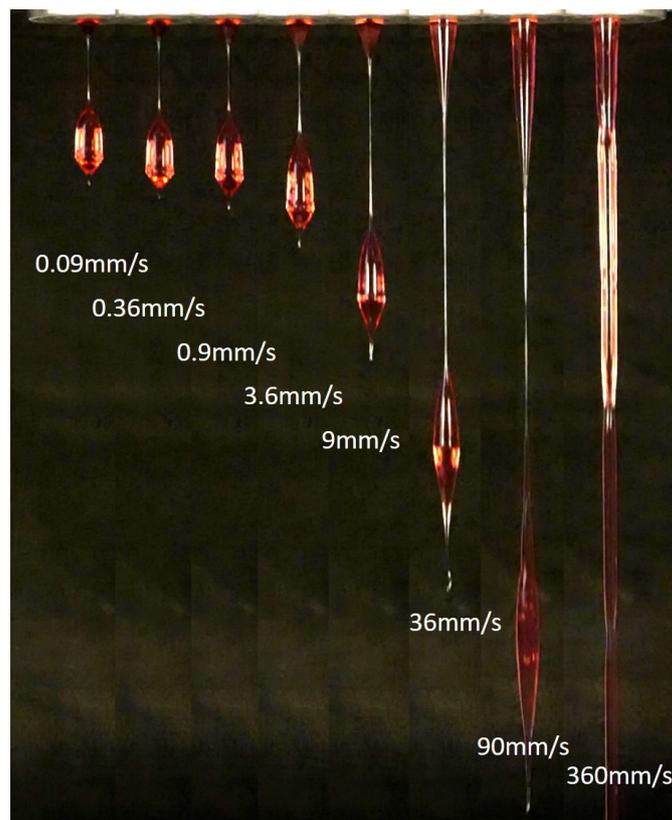


FIGURE 4.15 – Gouttes de carbopol juste avant séparation, pour des vitesses de sortie entre  $0.09\text{mm/s}$  et  $360\text{mm/s}$

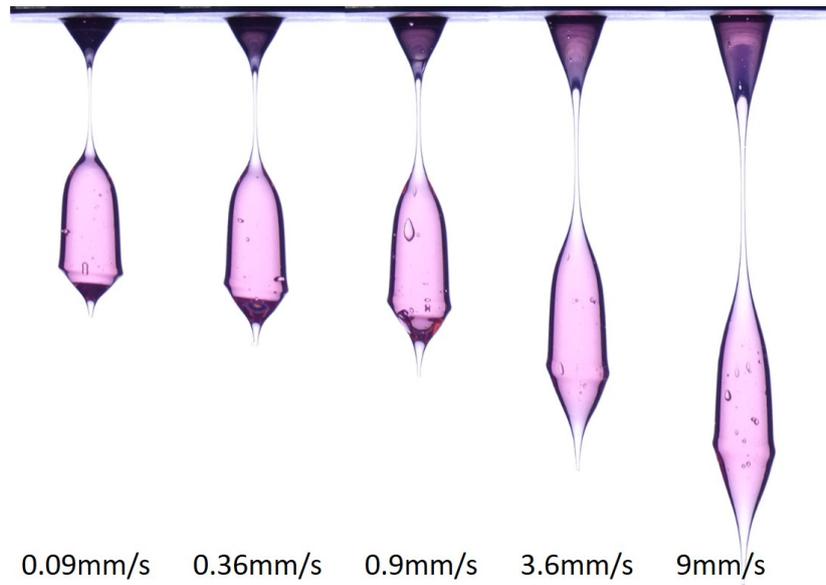


FIGURE 4.16 – Gouttes de carbopol (sur fond lumineux) juste avant séparation, pour des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 9mm/s

Finalement, pour ces trois fluides à seuil, il existe un domaine de vitesses de sortie pour lequel le point de pincement est décidé dès le début de l'écoulement. Pour des vitesses supérieures à une vitesse limite du domaine, qui varie selon les matériaux, la goutte est allongée car le pincement s'est déplacé pendant la séparation. Dans cette dernière situation, la section "seuil" a continué de se rétrécir au cours de la séparation, mais les sections au-dessus l'ont fait plus rapidement. On a suggéré que le kaolin et l'émulsion avaient des dynamiques d'écoulement proches car leurs gouttes commençaient à s'allonger à des vitesses limites similaires. Au vu des séries d'images de gouttes aux différentes vitesses, le carbopol a a priori une dynamique différente.

Cette étude permet de conclure qu'il est effectivement possible de mesurer le seuil de contrainte élongationnel à partir de la masse des gouttes à condition que la vitesse d'extrusion reste inférieure à une vitesse limite liée à des propriétés du matériau. Dans ces conditions, la contrainte seuil sera donnée par l'équation 4.2. On fournit dans la section suivante la mesure pratique du seuil par pesée de gouttes.

### 4.3 Détermination du seuil par pesée de gouttes

#### Mesure de la masse

La mesure des masses des gouttes permet de quantifier les observations sur l'influence

### 4.3. DÉTERMINATION DU SEUIL PAR PESÉE DE GOUTTES

de la vitesse de sortie faites dans la section 4.2, et va en plus permettre de mesurer un seuil en élancement avec l'équation 4.2. Pour faire les pesées, on place une balance à une trentaine de centimètres sous la buse. Une goutte qui se sépare tombe donc directement sur la balance. À cette hauteur, des phénomènes de splash, qui peuvent survenir aux vitesses d'impact élevées, n'ont pas lieu. La balance est reliée à un ordinateur, qui récupère en direct les données de masse et de temps toutes les 5ms. Après un essai où une dizaine de gouttes sont extrudées, on obtient un fichier avec les données de masse vs temps de l'essai. Pour manipuler ces données, un code permet de repérer le moment où une goutte tombe sur la balance (il est détaillé dans l'annexe B). On met en exemple l'extrusion d'une série de gouttes de kaolin à 23% faites à un diamètre de 1cm et une vitesse 0.9mm/s (figure 4.17). Le code récupère la masse de la goutte qui vient de tomber une fois que la masse est stabilisée. On voit sur l'insert que cela prend environ une demi-seconde. Dans les cas où l'extrusion d'une goutte prend moins d'une demi-seconde, le relevé de la masse de goutte est moins précis. Sur cet exemple en revanche, il n'y a pas de difficulté à obtenir les données, et l'écart entre les masses de gouttes est faible (l'erreur standard est de 4% sur cet exemple).

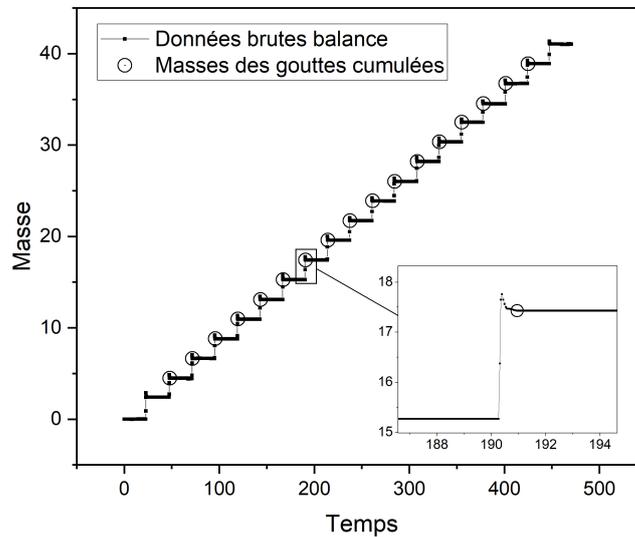


FIGURE 4.17 – Masse indiquée par la balance en fonction du temps. Les cercles dans le graphe principal et dans l'insert montrent les masses que le code repère comme correspondant à l'arrivée d'une nouvelle goutte sur la balance. La première et la dernière goutte sont écartées automatiquement.

### Emulsion

Nous montrons dans un premier temps l'évolution des masses des gouttes en fonction de la vitesse de sortie pour l'émulsion. On montre les données issues de la mesure de la masse par la balance (points noirs) avec les données obtenues à partir de l'imagerie, qui a été faite en parallèle (points blancs). La masse récupérée par l'imagerie correspond simplement au volume au premier temps après séparation, obtenu dans l'étude de la section 4.1, divisé par la densité de l'émulsion. Cette opération permet de valider que les volumes et les profils ont été bien mesurés par l'analyse d'image, et en particulier d'assurer la mesure du rayon critique  $R_c$  obtenu dans la section 4.1. Cette donnée d'imagerie permet en plus de prolonger la courbe de l'émulsion pour la vitesse de sortie à 140mm/s, où le code de mesure de masse de goutte n'arrive plus à distinguer les gouttes. On voit alors que la distribution de la masse des gouttes à 140mm/s est plus étalée qu'aux vitesses plus faibles, probablement parce que le point de pincement devient plus incertain à plus grande vitesse car une grande partie du filament est simultanément au-dessus du seuil. On retient de ce graphe que la masse ne varie pas entre 0.9mm/s et 20mm/s, comme on l'avait vu sur les images.

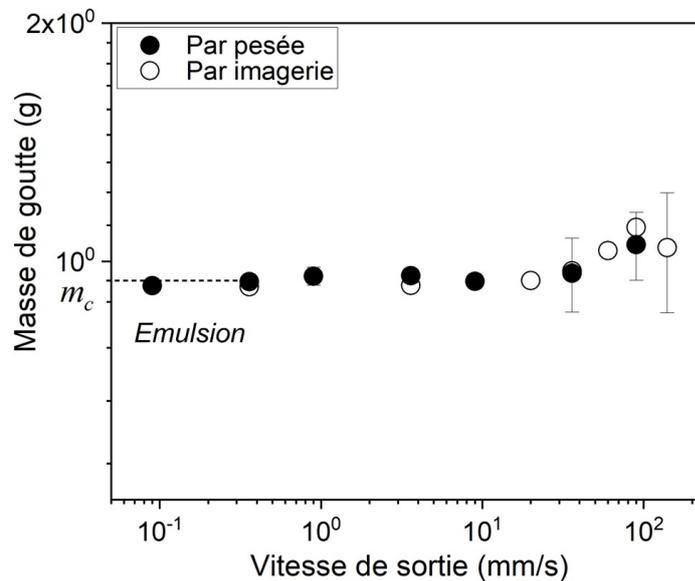


FIGURE 4.18 – Masse de goutte en fonction de la vitesse de sortie pour une émulsion ( $D_0 = 1\text{cm}$ ) à des vitesses de sorties entre 0.09mm/s et 140mm/s

### Suspension de kaolin

On montre ensuite les données du kaolin, pour différentes concentrations, avec une buse de 1cm de diamètre. Pour des vitesses supérieures ou égales à 0.9mm/s, la moyenne est faite sur au moins 10 gouttes. Pour les vitesses de 0.09mm/s et 0.36mm/s, la moyenne est faite sur moins de 10 gouttes, ce qui donne une erreur plus importante sur la mesure de la moyenne. On remarque tout d'abord que la masse moyenne des gouttes augmente avec la concentration en kaolin. A une concentration donnée, la masse augmente légèrement avec la vitesse, comme cela avait été observé sur les séries d'images. Néanmoins, dans le domaine des vitesses entre 0.09 et 9mm/s, cette augmentation reste faible. Elle est même quasiment nulle pour les concentrations les plus faibles (21 et 23%). La variation de la masse pour les concentrations plus importantes est d'environ 10% entre les gouttes extrudées à 0.9mm/s et 9mm/s. On notera toutefois que les gouttes de kaolin ont des distributions de masse assez variables, et cette variation de 10% n'est pas très grande devant l'incertitude des mesures à une vitesse donnée. Les expériences ont aussi été faites sur des diamètres de 2 et 4cm, et leurs résultats sont exploités dans la conclusion du chapitre.

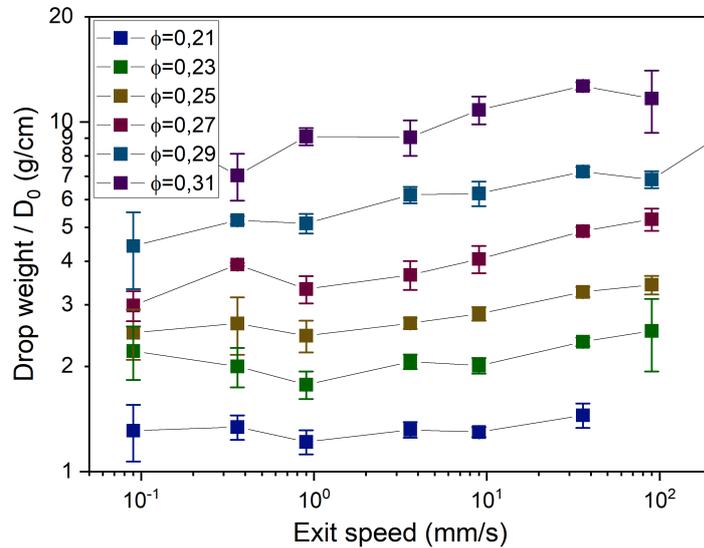


FIGURE 4.19 – Masse de goutte en fonction de la vitesse de sortie pour le kaolin ( $D_0 = 1\text{cm}$ ) à des vitesses de sorties entre 0.09mm/s et 90mm/s. Les concentrations volumiques en kaolin varient entre 21 et 31%

### Gel de carbopol

En traçant les masses des gouttes en fonction de la vitesse de sortie on retrouve naturellement la tendance qui avait été trouvée sur les séries d'images de gouttes aux différentes vitesses : les gouttes de carbopol évoluent plus avec la vitesse que celles de l'émulsion ou du kaolin. Il est intéressant de noter que la forme de la courbe des masses en fonction de la vitesse suit aussi la forme des courbes d'écoulement élongationnel obtenues dans le chapitre 3.

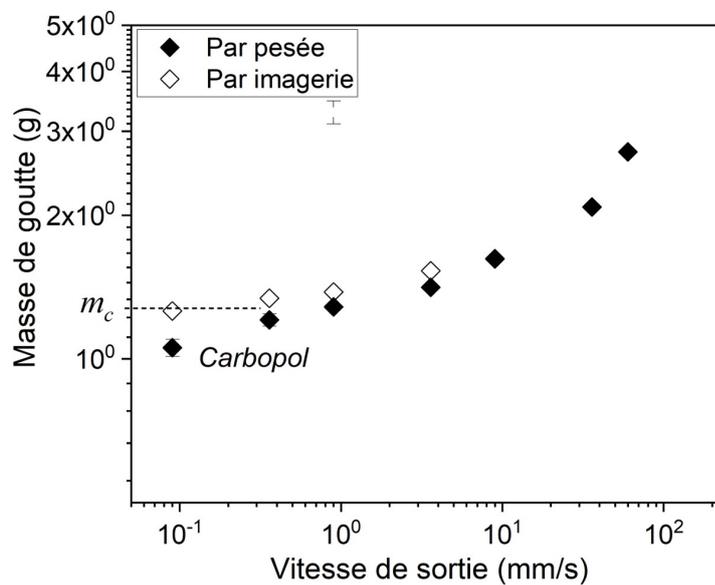


FIGURE 4.20 – Masse de goutte en fonction de la vitesse de sortie pour un gel de carbopol ( $D_0 = 1\text{cm}$ ) à des vitesses de sortie entre 0.09mm/s et 90mm/s

### Bilan : Seuil en élongation

Avec ces données de masses de gouttes, nous pouvons calculer le seuil en élongation de chacun des matériaux étudiés dans ce chapitre. Pour chaque matériau, nous prenons la valeur de la masse moyenne obtenue à une vitesse de 0.9mm/s, ce qui permet de travailler avec un nombre important de gouttes tout en assurant que la vitesse de sortie reste "faible" (c'est-à-dire que l'extrusion se fait dans le domaine pour lequel la masse n'augmente pas encore avec la vitesse). Les rayons critiques de transition du domaine solide au domaine liquide sont issus des études de la section 4.1. Nous avons considéré que le rayon critique du kaolin variait assez peu pour le prendre égal à  $0.85 * R_0$  quelle

que soit la concentration. On trace alors un graphe avec les données de contrainte seuil calculées par l'équation 4.2 en ordonnée, et le seuil mesuré en cisaillement multiplié par  $\sqrt{3}$  en abscisses (figure 4.21).

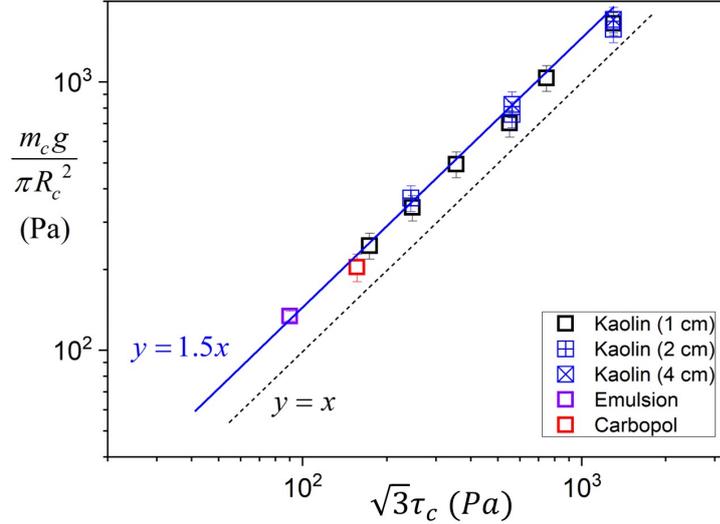


FIGURE 4.21 – Seuil élongationnel (d'après l'équation 4.2) en fonction du seuil en cisaillement multiplié par  $\sqrt{3}$ .

Les seuils élongationnels que nous mesurons pour ces 3 fluides à seuil simples (émulsion, kaolin et carbopol) valent  $1.5 * \sqrt{3}$  fois leurs seuils obtenus en cisaillement, c'est-à-dire que nous mesurons un écart au modèle HB 3D appliqué à l'élongation de 1.5. Ces résultats sont cohérents avec ceux des courbes d'écoulement obtenue dans le chapitre 3. Ils rejoignent les résultats récents de ZHANG et al. 2018 mais diffèrent d'autres résultats discutés dans la section 1.3.4.

## 4.4 Détermination du seuil en élongation du ciment

La difficulté technique posée par le ciment est essentiellement qu'il développe un gradient de concentration au cours de l'extrusion. Pour cette raison, nous comparons les seuils élongationnels obtenus par la mesure de masse de gouttes à des seuils en cisaillement obtenus par des essais juste après l'extrusion (voir section 3.4). Pour calculer le seuil élongationnel d'un ciment, il faut le rayon  $R_c$  de transition entre ses régimes solide et liquide, et la masse d'une goutte extrudée à faible vitesse.

On relève le volume sous le pincement au cours de la rupture pour des extrusions de ciment faites à des vitesses de 0.36mm/s (figure 4.22). La transition vers le plateau est un peu moins claire que sur le kaolin et l'émulsion. On peut néanmoins relever un rayon de transition entre une augmentation rapide du volume avec le rayon et un plateau où le rayon diminue fortement sans que le volume ne change. Ce rayon vaut  $0.8 * R_0$  pour les deux gouttes de la figure 4.22. L'incertitude sur la valeur de ce rayon vaut environ 7%, ce qui implique une incertitude sur l'aire de la section d'environ 14%.

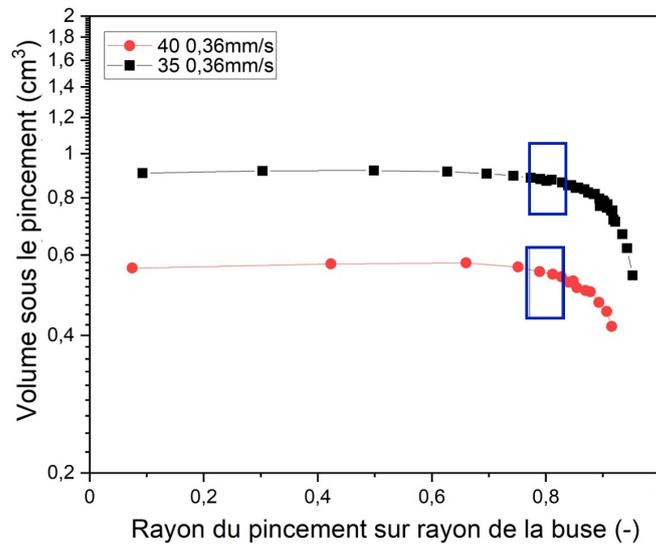


FIGURE 4.22 – Volume sous le pincement vs rayon du pincement sur rayon de la buse, pour des ciments à  $D_0 = 1cm$  extrudés à 0.36mm/s (concentration E/C=0.4 en rouge et E/C=0.35 en noir). Le rayon critique de transition entre les régimes et son incertitude sont repérés par un rectangle bleu.

On récupère les données de masse des 5 extrusions qui avaient été utilisées pour obtenir les courbes d'écoulement du ciment dans la section 3.4. Pour chaque session, on montre la distribution de masses de l'ensemble des gouttes extrudées. Le choix de travailler à partir de ces 5 extrusions se justifie maintenant, par le fait que les masses des gouttes varient relativement peu au cours d'une extrusion. De la même manière que pour les autres fluides à seuil, on mesure la moyenne des masses des gouttes, en écartant cette fois les 5 premières gouttes, qui ont des masses très variables.

Le seuil du ciment en élongation peut alors être calculé pour ces 5 extrusion avec la

formule

$$\sigma_c = \frac{m_{goutte}g}{\pi R_c^2}$$

Ainsi, pour ces 5 ciments, on obtient 5 seuils entre 210Pa et 900Pa.

On note que pour 2 ciments initialement identiques à E/C=0.4 (par exemple, mais marche aussi à 0.45), les masses des gouttes extrudées sont très différentes selon qu'on regarde la session à 0.36mm/s ou 9mm/s. Si on comparait simplement les résultats d'élongation aux résultats en cisaillement de la section 2.4, on aurait tendance à dire qu'il y a un effet de la vitesse sur la rupture du ciment. Mais en faisant des essais de rhéométrie en cisaillement sur les gouttes après extrusion à 0.36mm/s et 9mm/s, on constate qu'elles donnent des courbes très différentes : le seuil des gouttes extrudées à 0.36mm/s vaut 21Pa en cisaillement, contre 55Pa pour celles à 9mm/s. La différence de rhéométrie en cisaillement entre les gouttes ne peut pas être attribuée à la structuration, car les échantillons sont précisailés juste avant l'essai de rhéométrie. De plus, l'extrusion à 9mm/s s'est faite avant celle à 0.36mm/s, et c'est elle qui fournit les gouttes avec le seuil le plus élevé. On suggère donc qu'il y a eu le développement d'un gradient de concentration dans la machine d'extrusion, qui fait qu'une grande vitesse de sortie permet de sortir un filament plus concentré, donc plus seuillé. Finalement, pour chacune des 5 extrusions, on a accès à une valeur de seuil en cisaillement (avec précisaillement, sur les gouttes après extrusion) et une valeur de seuil en élongation (pesée de gouttes) qui peuvent se comparer car les états de structuration et de concentration sont comparables.

Les résultats du ciment sont insérés avec les résultats des fluides à seuil simples dans la figure 4.24. La droite  $y = 1.5x$  qui décrit bien les résultats précédents ne décrit pas ceux du ciment. Même en s'additionnant, nos approximations sont loin de pouvoir expliquer le rapport d'environ 5 entre le seuil en élongation mesuré et le seuil en élongation "attendu" du modèle de HB 3D. De plus, ce rapport très différents des autres fluides à seuil est à peu près le même pour ces 5 ciments. On suppose donc que l'écoulement du ciment se fait de manière différente de celui des autres fluides à seuil simples. Une particularité du ciment est qu'un écoulement peut provoquer du coincement entre les grains, comme observé sur des géométries plan-plan (section 2.4). L'effet de coincement pourrait être très important en élongation, et limiterait ainsi l'écoulement du filament.

Pour vérifier cette idée sur les effets du coincement, on pourrait modifier un ciment de manière à limiter le coincement et mesurer alors le comportement de ce ciment en élongation. L'HEMC, un polymère qui vient s'adsorber à la surface des particules de ciment, devrait supprimer (au moins en partie) les effet de coincement car les particules

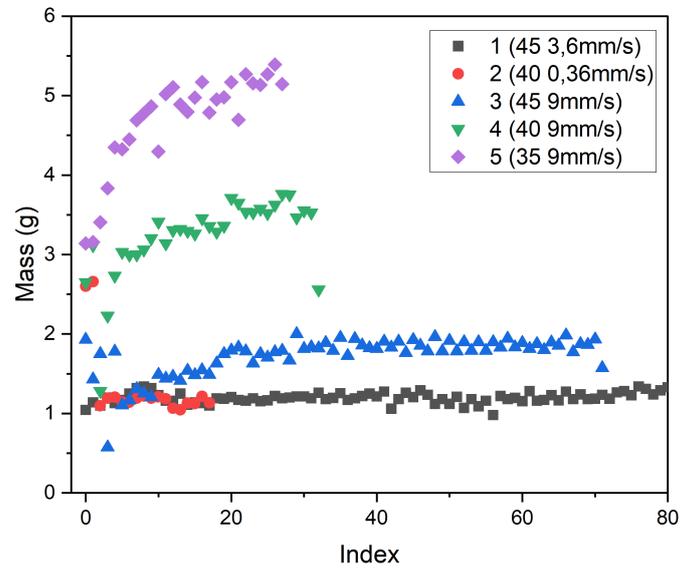


FIGURE 4.23 – Masses des gouttes de ciment pour les différentes conditions d’extrusion.

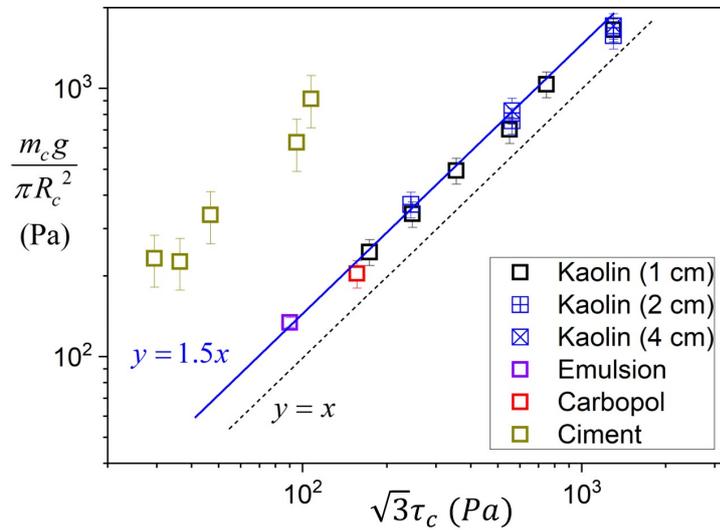


FIGURE 4.24 – Seuil élongationnel (d’après l’équation 4.2) en fonction du seuil en cisaillement multiplié par  $\sqrt{3}$ , pour le ciment, le kaolin, l’émulsion et le gel de carbopol

de ciment ne seraient plus directement au contact les unes des autres. Un tel essai pourrait être une piste pour poursuivre les observations faites sur le ciment sans additif.

## 4.5 Conclusions sur la technique et conséquences pratiques

En analysant les façons dont s'écoule un filament cylindrique étiré par gravité, nous sommes capables de déduire la valeur de son seuil en élongation. Ce dernier est obtenu en mesurant la masse de la goutte formée après la séparation du filament et en estimant le rayon critique marquant la transition entre les régimes solide et liquide au niveau du pincement. Avec ces deux données, l'équation 4.2 donne la valeur de la contrainte seuil du matériau. Sur des fluides à seuil simples (suspension de kaolin, émulsion, gel de carbopol), nous avons systématiquement trouvé un rapport entre seuil en élongation et seuil en cisaillement valant  $1.5 * \sqrt{3}$ . Ce rapport, en accord avec ZHANG et al. 2018, est 1.5 fois supérieur au critère de Von Mises (et donc au modèle de HB 3D pour une élongation simple uniaxiale). Nous manquons d'explications pour avoir une discussion critique de cette différence ici. Sur du ciment, le rapport vaut environ  $5 * \sqrt{3}$ . Cette grande différence pourrait être l'effet de coincement de particules de ciment en élongation. L'ajout de polymères pour limiter le coincement pourrait aider à vérifier cette idée, d'autant plus que d'autres études sur des ciments imprimables (contenant plusieurs additifs) trouvent que leurs ciments suit le critère de Von Mises (DUCOULOMBIER et al. 2021, ROUSSEL, RICHARD et al. 2022).

De manière pratique, la pesée de gouttes se fait assez simplement, mais le relevé du rayon critique  $R_c$  nécessite une analyse d'image plus complexe. Pour éviter de faire cela, on propose en pratique de se référer à nos valeurs et de considérer que  $R_c = 0.8$  pour des gels,  $R_c = 0.85$  pour des suspensions et  $R_c = 0.9$  pour des émulsions. Cette estimation du rayon critique sera la principale source d'incertitude dans la mesure du seuil par pesée. Dans notre étude elle est de l'ordre de 10% avec l'analyse précise pour obtenir le rayon critique. Elle sera probablement d'environ 20% en pratique sans cette analyse.

Pour conclure, on propose de faire un bilan des types de matériaux et conditions d'extrusion valides pour ce test :

- Type de matériau : cette technique est directement utile pour les fluides à seuil simples. Dans l'idéal, pour un fluide à seuil thixotrope, il serait possible de compléter l'approche de manière à mesurer l'augmentation du seuil avec le temps. A des vitesses de sortie différentes, le matériau se met à s'écouler après plus ou moins de temps, et a donc

plus ou moins le temps de se structurer. Ce temps devrait être de l'ordre de la vitesse de sortie multipliée par le diamètre de la buse. Le seuil en élongation apparent devrait alors être une fonction décroissante de la vitesse de sortie, et la longueur de la goutte devrait augmenter cette fois aux faibles vitesses de sortie.

Il est possible que cette méthode montre des limites sur l'étude de polymères ou de matériaux granulaires, pour lesquels l'élongation amène des effets de structuration particuliers (viscosité élongationnelle très grande pour les polymères, et coincements pour les matériaux granulaires).

- Valeur de seuil : Dans ce travail nous avons utilisé des matériaux avec des seuils en cisaillement compris entre 50 et 1000Pa. Il serait possible d'utiliser cette technique avec des seuils supérieurs mais leur comparaison aux données de cisaillement devient difficile à cause du développement de bandes de cisaillement ou de rupture. Ces matériaux deviennent plus proches de matériaux purement plastiques que de fluides (à seuil). En limite inférieure, on souhaiterait pouvoir garder des effets de tension de surface négligeables. Si le seuil diminue, le rayon peut théoriquement augmenter pour limiter la tension de surface (équation 3.19). Mais l'augmentation du rayon est limitée car des instabilités empêchent la goutte de se former correctement lorsque le rayon est à peu près supérieur à la longueur de la goutte.

- Paramètres d'extrusion : Le diamètre de buse devrait essentiellement être choisi de manière à ce que les effets de tension de surface soient négligeables. La vitesse d'extrusion doit rester telle que les gouttes sont extrudées dans le domaine de vitesses "faibles", qui dépend des propriétés d'écoulement du matériau. D'après nos expériences, une vitesse de sortie de  $1mm.s^{-1}$  sera généralement satisfaisante.

# Chapitre 5

## Motifs de dépôts

Dans les chapitres précédents, nous avons développé des techniques de caractérisation des fluides à seuil dans le cadre particulier de l'écoulement d'extrusion. Nous avons vu que l'extrusion met en jeu un écoulement qui mélange cisaillement et élongation. L'aspect critique de la séparation en gouttes est principalement piloté par un écoulement d'élongation au point de pincement.

Lorsque la distance entre la surface de dépôt et la buse est assez faible, le filament atteint la surface avant de casser. Dans un travail que nous avons mis dans l'annexe C, nous avons écrit que dans ce cas, le filament peut, selon un critère de minimisation de l'énergie dissipée, ou bien se comprimer de manière homogène, ou bien flamber. Nous avons modélisé et observé expérimentalement ce critère pour un filament de kaolin.

### 5.1 Observations générales

On s'intéresse au dépôt d'un filament sur une surface, étape critique pour la forme de l'objet imprimé en 3D. On cherche à observer et à analyser les formes que peut prendre un dépôt de fluide à seuil en fonction des paramètres d'impression. Dans ce procédé, les paramètres qui peuvent varier sont des paramètres matériau (liés aux propriétés d'écoulement ou de déformation du matériau utilisé), et des paramètres machine.

On se limite aux dépôts de filaments de ciment, dont la compréhension est un objectif de cette thèse, et à ceux de suspensions de kaolin à différentes concentrations. L'étude des dépôts de kaolin, matériau modèle dont le comportement est celui d'un fluide à seuil simple, a pour but de nous permettre d'approfondir notre compréhension des mécanismes à l'origine des phénomènes observés, et parvenir ainsi à décrire des dé-

pôts modèles pour le ciment dans un but d'application à l'industrie d'impression 3D du ciment. Les observations réalisées sur le kaolin seront naturellement généralisables à l'ensemble des fluides à seuil simples. Nous avons en effet pu constater que les propriétés d'écoulement du kaolin étaient analogues à celle d'une émulsion et d'un gel de Carbopol en cisaillement simple et en élongation.

Les paramètres machines sont ceux qui peuvent varier dans une impression 3D classique. Dans cette étude, le filament est toujours déposé sur une surface plane horizontale et rigide. Dans le cadre d'une impression 3D réelle, cela correspondrait au dépôt de la première couche. Pour étudier, avec le même dispositif, le dépôt sur une couche de matériau déjà déposée, il faudrait considérer une surface éventuellement courbe et déformable. Il est possible d'adopter plusieurs stratégies sur la hauteur d'impression et la géométrie de la buse (section 1.1.2). Dans les expériences qui suivent, on met en lumière une large diversité des formes de dépôt en considérant des hauteurs entre la buse et la surface de dépôt (notées  $H$ ) supérieures au diamètre de buse  $D_0$ , avec une buse cylindrique. Nous faisons varier les diamètres des buses entre 1.2 et 20mm. Celles de l'imprimante Wasp ont des diamètres de 1.2 et 3mm, et celles de l'extrudeuse Instron ont des diamètres de 10 et 20mm. Nous faisons également varier les deux vitesses caractéristiques de l'impression : la vitesse de déplacement de la buse et la vitesse moyenne de sortie du filament. La vitesse de déplacement de la buse correspond à la vitesse de translation relative entre la buse et la surface de dépôt. Il est donc équivalent de translater la buse (imprimante Wasp) ou la surface (extrudeuse Instron). On note cette vitesse de translation  $V_{trans}$ . La vitesse moyenne de sortie du filament  $\bar{V}_{sortie}$  est le débit en sortie de buse divisé par la section de la buse. Elle est bien contrôlée avec l'Instron, mais nécessite une mesure post extrusion avec l'imprimante Wasp (voir annexe A). Les notations introduites sont résumées sur la figure 5.1.

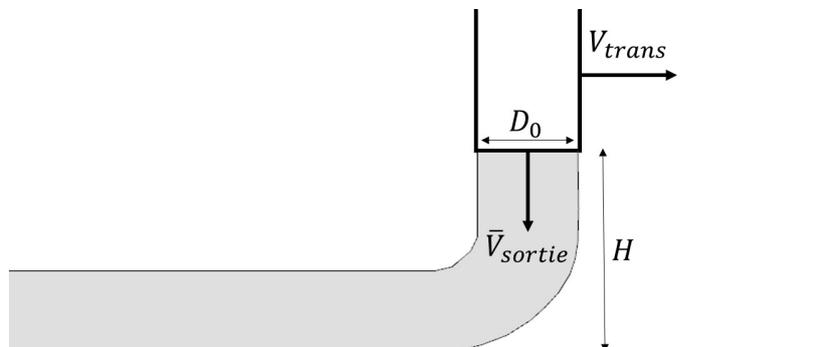


FIGURE 5.1 – Schéma du dépôt avec les notations introduites

### Impact de la vitesse

Pour commencer, intéressons-nous à l'impact de la vitesse de sortie sur les formes des dépôts. Pour tous les dépôts de la figure 5.2, seule  $V_{trans}$  varie, les autres paramètres restent constants avec  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 3mm$ ,  $H = 15mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$ . On constate alors que, selon la vitesse de translation, différents motifs apparaissent :

- Pour  $V_{trans} = 18mm.s^{-1}$ , le filament se dépose sous forme de lignes discontinues. Comme la vitesse de translation est supérieure à la vitesse de sortie, le filament est en traction, il peut se rompre.
- Pour  $V_{trans} = 9.8mm.s^{-1}$ , on observe une ligne droite continue
- Pour  $V_{trans} = 8mm.s^{-1}$ , le filament se dépose sous forme de méandres
- Pour  $V_{trans} = 5mm.s^{-1}$ , il se dépose sous forme de boucles alternées
- Pour  $V_{trans} = 2mm.s^{-1}$ , il se dépose sous formes de boucles translattées

Dans ces 4 derniers cas la vitesse de translation est inférieure à la vitesse de sortie, un surplus de matériau est alors extrudé. Selon la quantité en surplus, le filament peut s'épaissir et se déposer sous forme de ligne ( $V_{trans} = 9.8mm.s^{-1}$ ) ou se déformer en suivant un régime plus complexe (méandres ou boucles). Autrement dit, au-delà d'une certaine vitesse d'extrusion le filament ne peut plus simplement s'épaissir, il lui faut trouver un moyen de se déposer rapidement, ce qu'il fait en décrivant un chemin de plus en plus tortueux.

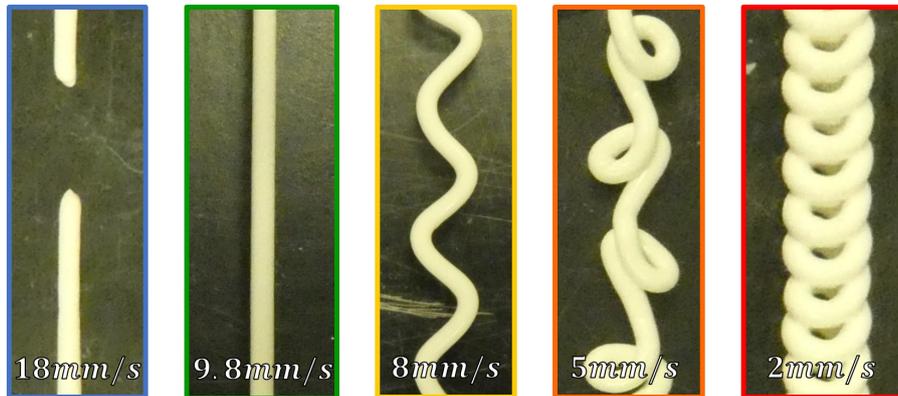


FIGURE 5.2 – Dépôts en faisant varier la vitesse de translation pour  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$ ,  $H = 15mm$  et  $D_0 = 3mm$

### Impact de la hauteur

Pour observer l'effet de la hauteur de l'extrusion sur la forme des dépôts, on peut

## 5.1. OBSERVATIONS GÉNÉRALES

cette fois fixer la vitesse et faire varier la hauteur de la buse. On fixe en revanche la valeur des autres paramètres à  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 3\text{mm}$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10\text{mm.s}^{-1}$ . Notons cependant que comme les motifs des dépôts changent en fonction de la vitesse de translation choisie, l'impact de la hauteur sur ces motifs se manifeste différemment selon  $V_{trans}$ . Pour cet exemple, nous considérons la vitesse  $V_{trans} = 5\text{mm.s}^{-1}$  (dans la suite du chapitre, on montrera l'effet de la hauteur à d'autres vitesses) et nous étudions l'impact de la hauteur de 3mm à 50mm (figure 5.3). En augmentant la hauteur à partir de 3mm, on observe d'abord une ligne à 3mm, puis des méandres à 6 et 9mm dont on peut remarquer qu'ils ont un diamètre qui diminue et une amplitude qui augmente avec la hauteur, puis des boucles alternées pour  $H$  de 15 à 35mm, et enfin des gouttes à 50mm. Dans ces 7 essais, la quantité de matière extrudée pendant un temps donné est toujours la même, mais la variation de la hauteur induit des conditions d'écoulement différentes.

Autrement dit, la vitesse n'est pas le seul facteur déterminant de la forme du filament déposé, comme on aurait pu le penser à partir des observations simples des différents régimes de dépôts en fonction de la vitesse décrites ci-dessus. La proximité de la buse permet de forcer plus ou moins la forme du dépôt. Ainsi, lorsque la buse est très proche de la surface solide elle permet une plus forte compression du matériau, et le filament reste stable. Lorsqu'on éloigne la buse de la surface, on laisse progressivement de plus en plus de liberté au filament, qui de ce fait réduit son épaissement au profit de la formation de chemins de plus en plus tortueux.

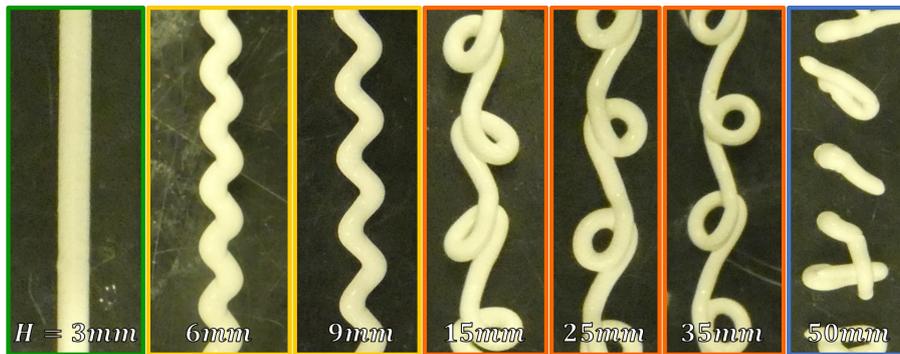


FIGURE 5.3 – Dépôts en faisant varier la hauteur pour  $V_{trans} = 5\text{mm.s}^{-1}$ ,  $\bar{V}_{sortie} = 10\text{mm.s}^{-1}$  et  $D_0 = 3\text{mm}$

Dans la suite, nous allons faire varier systématiquement les paramètres de hauteur, de diamètre de buse, de vitesse et de concentration en kaolin pour mieux cerner les conditions d'écoulement et tenter d'identifier des mécanismes d'écoulement généraux. Dans les expériences qui suivent, on a étudié une vingtaine de niveaux de vitesses, une

dizaine de hauteurs, quatre diamètres et trois concentrations de kaolin. Cela représente environ  $20 * 10 * 4 * 3 = 2400$  dépôts, que nous avons réduits à environ un millier en ciblant certains diamètres et concentrations, de façon à tout de même cerner les zones de transition de régimes. À noter que j'ai bénéficié de l'aide d'une stagiaire (Imane Fidah) pour la réalisation d'une partie de ce très grand nombre d'expériences.

## 5.2 Construction d'une cartographie et répétabilité

Nous classons les différents motifs obtenus en cinq catégories : la ligne discontinue, la ligne continue, les méandres, les boucles alternées et les boucles translattées. Pour une meilleure lisibilité, nous attribuons un code couleur à chacun de ces motifs : ligne discontinue en bleu, ligne continue en vert, méandres en jaune, boucles alternées en orange et boucles translattées en rouge (cf. figures 5.2 et 5.3).

Nous attribuons un motif à un dépôt quand, pour un jeu de paramètres donné, on constate la répétition exacte du motif sur toute la longueur de la ligne. Notons que cette nomenclature laisse de côté une partie de l'information en réduisant le dépôt à un type de motif bien qu'on puisse, pour la ligne discontinue, les méandres, les boucles alternées et translattées, caractériser également le dépôt par la fréquence et l'amplitude des motifs, qui varient en fonction des paramètres. Ceci est particulièrement clair sur les motifs méandres, et nous discuterons rapidement de l'intérêt de connaître la fréquence et la période des méandres dans la conclusion.

Pour certaines valeurs des paramètres, il est difficile d'attribuer le dépôt obtenu à une catégorie de motifs. En effet, pour un jeu de paramètres donné, le motif peut évoluer au cours d'une ligne. Il arrive aussi qu'entre deux essais avec le même jeu de paramètres, le motif obtenu soit différent. C'est en général le cas lorsque le jeu de paramètres considéré correspond exactement à un point frontière entre deux motifs (voir figure 5.4).

Pour évaluer l'importance de ces fluctuations, nous avons réalisé trois fois la même série de mesures complètes (variation de la hauteur et de la vitesse) d'une suspension de kaolin à  $\phi = 27\%$  et un diamètre de buse de 3mm. Les fluctuations des motifs observés dans ce cas nous permettent d'estimer l'incertitude sur la valeur des paramètres qui correspondent à la frontière entre deux motifs. On fait l'hypothèse que cette erreur reste à peu près la même pour d'autres concentrations de kaolin ou d'autres diamètres de buse. Il sera particulièrement important de prendre cette erreur en compte quand nous regarderons en détail l'influence d'un paramètre sur les formes de dépôts (section

5.3).

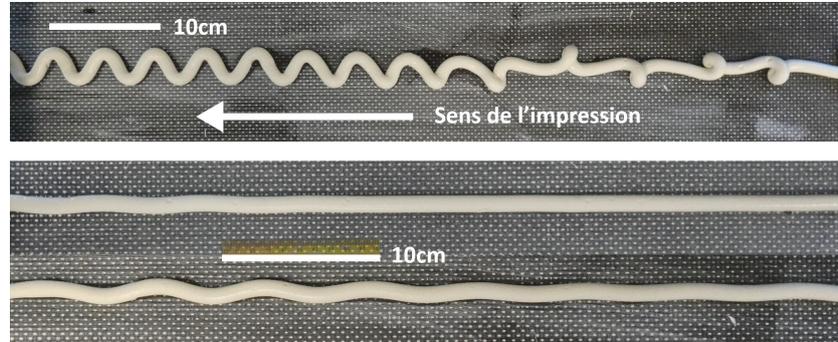


FIGURE 5.4 – Dépôts à  $D_0 = 1\text{cm}$  et  $V_{trans} = 1\text{cm.s}^{-1}$ . En haut, un dépôt à une hauteur  $H = 4\text{cm}$  et vitesse  $\bar{V}_{sortie} = 1.67\text{cm.s}^{-1}$  dont le motif évolue de boucles alternées vers des méandres. En bas, deux dépôts à  $H = 6\text{cm}$  et  $\bar{V}_{sortie} = 1.02\text{cm.s}^{-1}$  où la frontière entre ligne continue et méandres est ténue.

On représente les résultats de dépôts aux différentes vitesses et aux différentes hauteurs sous la forme d'une cartographie avec en abscisse la hauteur  $H$ , et en ordonnée la vitesse  $V_{trans}$ . La figure 5.5 montre une cartographie construite avec les photographies des dépôts d'une des 3 séries de mesures. Elle permet de voir comment on a attribué un motif (c'est-à-dire une couleur dans la cartographie) à un dépôt, et d'apprécier les similitudes et différences de dépôts pour un même motif. La figure 5.6 montre les cartographies superposées des 3 séries répétées. Les répétitions des 3 séries n'ont été effectuées que pour les valeurs des couples de paramètres pour lesquelles l'attribution d'un motif n'est pas claire. Ces valeurs correspondent aux points frontières entre deux motifs, ainsi qu'à leur voisinage. Pour voir plus en détail l'incertitude sur la transition entre les motifs, on a tracé les valeurs des frontières entre le régime de lignes discontinues et de lignes continues à part, ainsi que la frontière entre le régime de lignes continues et de méandres sur la figure 5.7.

Dans ces essais, l'incertitude totale sur les valeurs des frontières entre les régimes de motifs est la somme de 2 erreurs. Pour trouver la valeur des frontières, on prend la valeur moyenne des 2 points frontières. En réalité, on sait seulement que la frontière se situe quelque part entre ces 2 points. Généralement, nous avons pris un pas de vitesse de 0.1 (figure 5.6), ce qui donne une erreur d'environ 5%. De plus, la distance entre les 3 courbes frontières est aussi d'environ 5% pour les 2 types de frontières (figure 5.7). Au bilan, on considère que l'incertitude sur une courbe représentant une frontière entre 2 régimes de motifs est de 10% en ordonnée. L'erreur sur la hauteur du dépôt et le

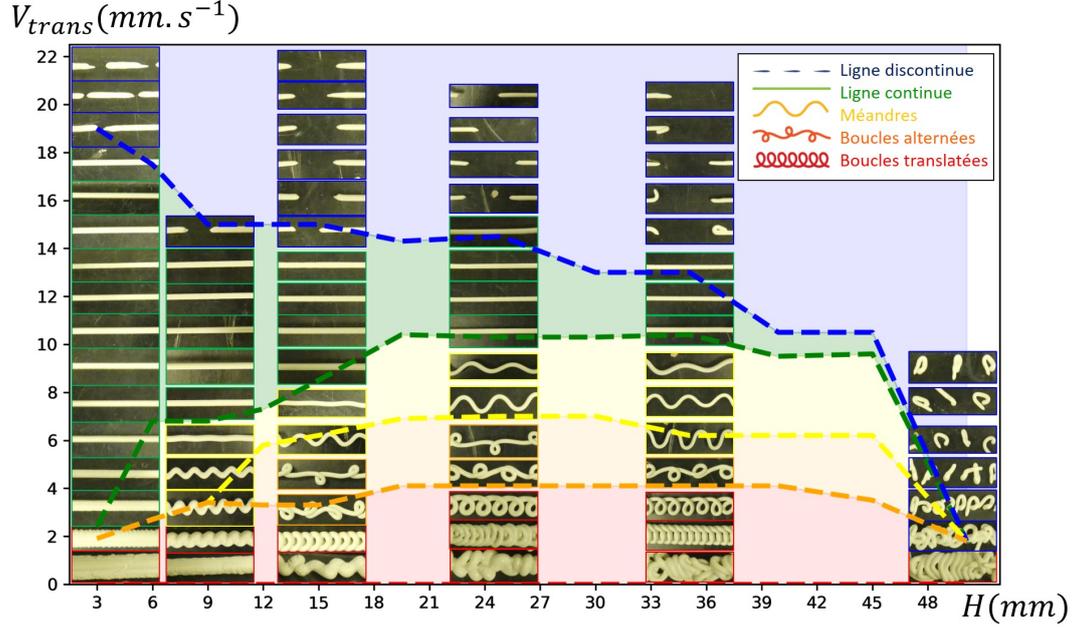


FIGURE 5.5 – Cartographie  $V_{trans}(H)$  ( $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 3mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$ ) avec les photographies des motifs à  $H = 3, 9, 15, 25, 35$  et  $50mm$ . Le fond et les frontières sont construits à partir de l'ensemble des données expérimentales de la cartographie (voir figure 5.6). Le code couleur des motifs est rappelé en légende.

diamètre de la buse est quant à elle quasiment nulle.

### 5.3 Variations en fonction des paramètres de concentration, vitesse et diamètre

On fait varier la concentration volumique en kaolin  $\phi$ , la vitesse de translation  $V_{trans}$ , la vitesse de sortie  $\bar{V}_{sortie}$ , la hauteur  $H$  et le diamètre  $D_0$ . On propose de voir plus en détail, à l'aide de l'outil de cartographie, l'influence de chacun des paramètres sur les formes de dépôts de suspensions de kaolin.

#### 5.3.1 Influence de la concentration en kaolin

On construit des cartographies  $(H, V_{trans})$  à  $D_0 = 3mm$  (et  $1.2mm$  dans l'annexe D),  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$  et à des concentrations  $\phi = 23, 27, 31$  et  $34\%$ , donc à des seuils en cisaillement d'environ 100, 300, 700 et 1400Pa (voir chapitre 2). Pour chaque concentration, on arrête l'expérience à une hauteur à partir de laquelle on observe systématiquement que le filament casse avant même d'atteindre la surface. On peut donc

### 5.3. VARIATIONS EN FONCTION DES PARAMÈTRES DE CONCENTRATION, VITESSE ET DIAMÈTRE

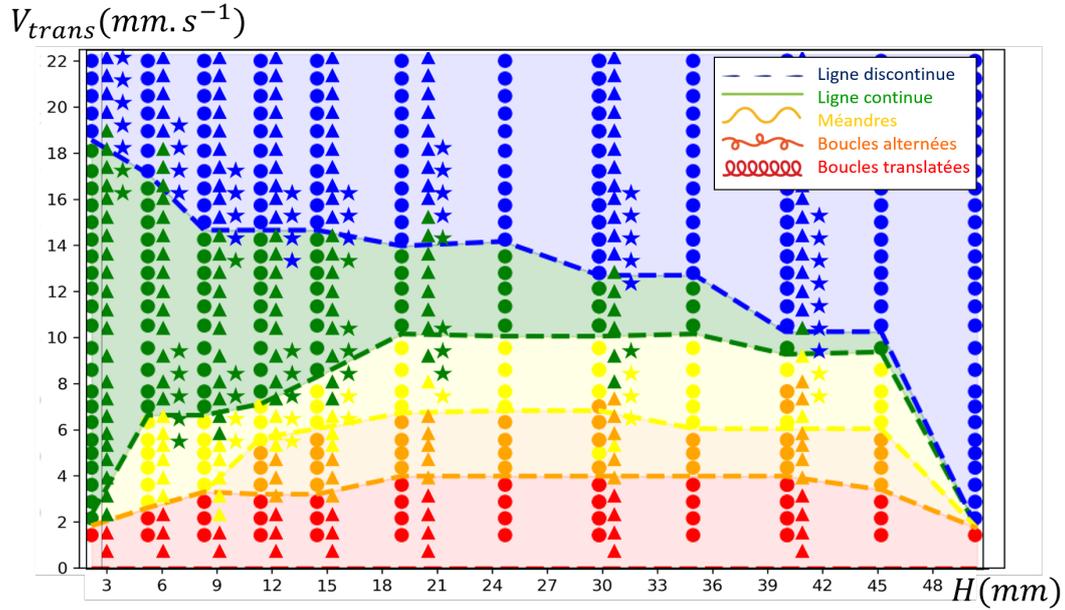


FIGURE 5.6 – Données de 3 séries d’expériences pour des paramètres identiques  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 3\text{mm}$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10\text{mm.s}^{-1}$ , regroupés dans une cartographie  $V_{trans}(H)$ . On repère respectivement les séries 1, 2 et 3 par des triangles, ronds et étoiles.

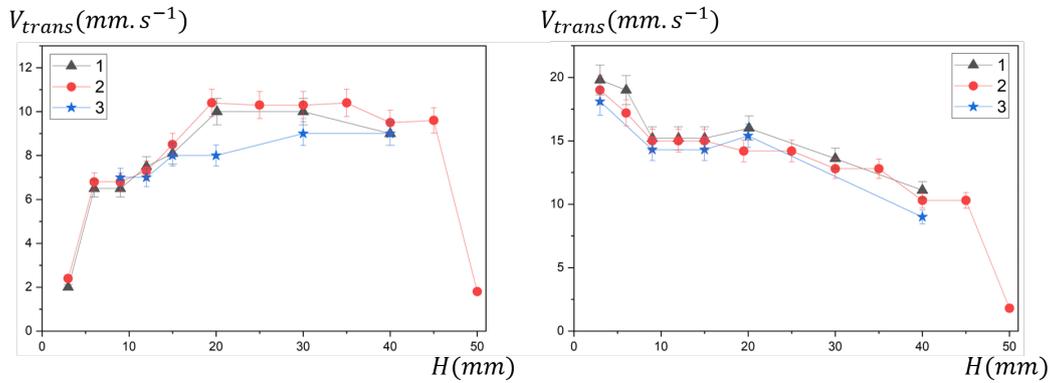


FIGURE 5.7 – Courbes  $V_{trans}(H)$  ( $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 3\text{mm}$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10\text{mm.s}^{-1}$ ). À gauche, les valeurs frontières entre les domaines des lignes continues et des méandres. À droite, les valeurs frontières entre les domaines des lignes discontinues et continues.

associer une hauteur critique de cassure à une concentration, et les cartographies nous permettent de constater que cette hauteur évolue approximativement linéairement avec le seuil (figure 5.8). Il est ensuite utile de tracer les frontières au-dessus et en-dessous de la ligne continue pour ces 4 concentrations dans un même graphique (figure 5.9). La

frontière entre ligne continue et discontinue (figure 5.9 à droite) est à peu près constante et vaut  $V_{trans} \approx 15mm.s^{-1}$ . De ces expériences, il apparaît donc qu'il y a une vitesse critique associable à la cassure, et qu'elle ne dépend pas de la concentration en kaolin. Sur le graphique de la frontière entre méandres et ligne continue (figure 5.9 à gauche), on distingue deux portions. Jusqu'à  $H \approx 15mm$ , la valeur de la vitesse frontière augmente avec la hauteur, puis elle atteint un plateau où  $V_{trans} \approx 10mm.s^{-1}$ . Il semble aussi que les courbes plus concentrées soient situées au-dessus dans la première portion. Cette dernière remarque est à relativiser car nos observations sont faites sur un faible nombre de points dont les valeurs fluctuent. On peut néanmoins retrouver les mêmes tendances à 1.2mm (annexe D), diamètre pour lequel on a fait varier 5 concentrations. Pour nuancer un peu plus, on remarque que la tension de surface peut jouer un rôle si elle devient de l'ordre du seuil, donc si  $\sigma_c D_0 \approx \gamma$ . Diminuer le diamètre de buse ou le seuil augmente l'effet de tension de surface. Pour le diamètre de 1.2mm, nous avons  $\frac{\gamma}{D_0} \approx \frac{7*10^{-2}}{1.2*10^{-3}} = 58Pa$ . Pour le diamètre de 3mm,  $\frac{\gamma}{D_0} \approx \frac{7*10^{-2}}{3*10^{-3}} = 23Pa$ . Les données à  $\phi = 23\%$  ( $\sigma_c = 100Pa$ ) à 3mm et  $\phi = 27\%$  ( $\sigma_c = 300Pa$ ) à 1.2mm peuvent donc être affectées par ce phénomène.

En conclusion, avec les cartographies, on a montré qu'il existe une hauteur critique, qu'on note  $H_c$ , fonction de la concentration, au-dessus de laquelle le filament casse systématiquement. Ce mode de cassure, qui s'apparente à la rupture d'une goutte (voir l'aspect des photographies à  $H = 50mm$  sur la figure 5.5) sera discuté dans la section théorique 5.4. Pour des hauteurs plus faibles que  $H_c$ , on observe que l'apparition de méandres ou de lignes discontinues est en première approximation indépendante de la concentration, donc du seuil, et est décrite seulement par les paramètres de hauteur et de vitesse (si la tension de surface est négligeable). Ce résultat est important : des mécanismes identiques quelle que soit la valeur du seuil impliquent que les effets visqueux jouent un rôle négligeable dans le procédé. On va poursuivre cette observation dans la section suivante.

### 5.3.2 Influence de la vitesse

Nous avons pu observer ci-dessus que la forme des motifs est principalement dictée par la comparaison entre la quantité de matériau fourni par l'extrudeur par unité de temps et la quantité de matériau que le plateau mobile (relativement à l'extrudeur) est capable d'évacuer. En particulier, quand les deux phénomènes se déroulent à la même vitesse, on s'attend à ce que le filament ait une forme proche d'une ligne continue. Le rapport des vitesses est alors de 1. Dans ces conditions, il est naturel de prolonger le raisonnement et d'envisager que les autres transitions de domaines interviennent pour

5.3. VARIATIONS EN FONCTION DES PARAMÈTRES DE CONCENTRATION, VITESSE ET DIAMÈTRE

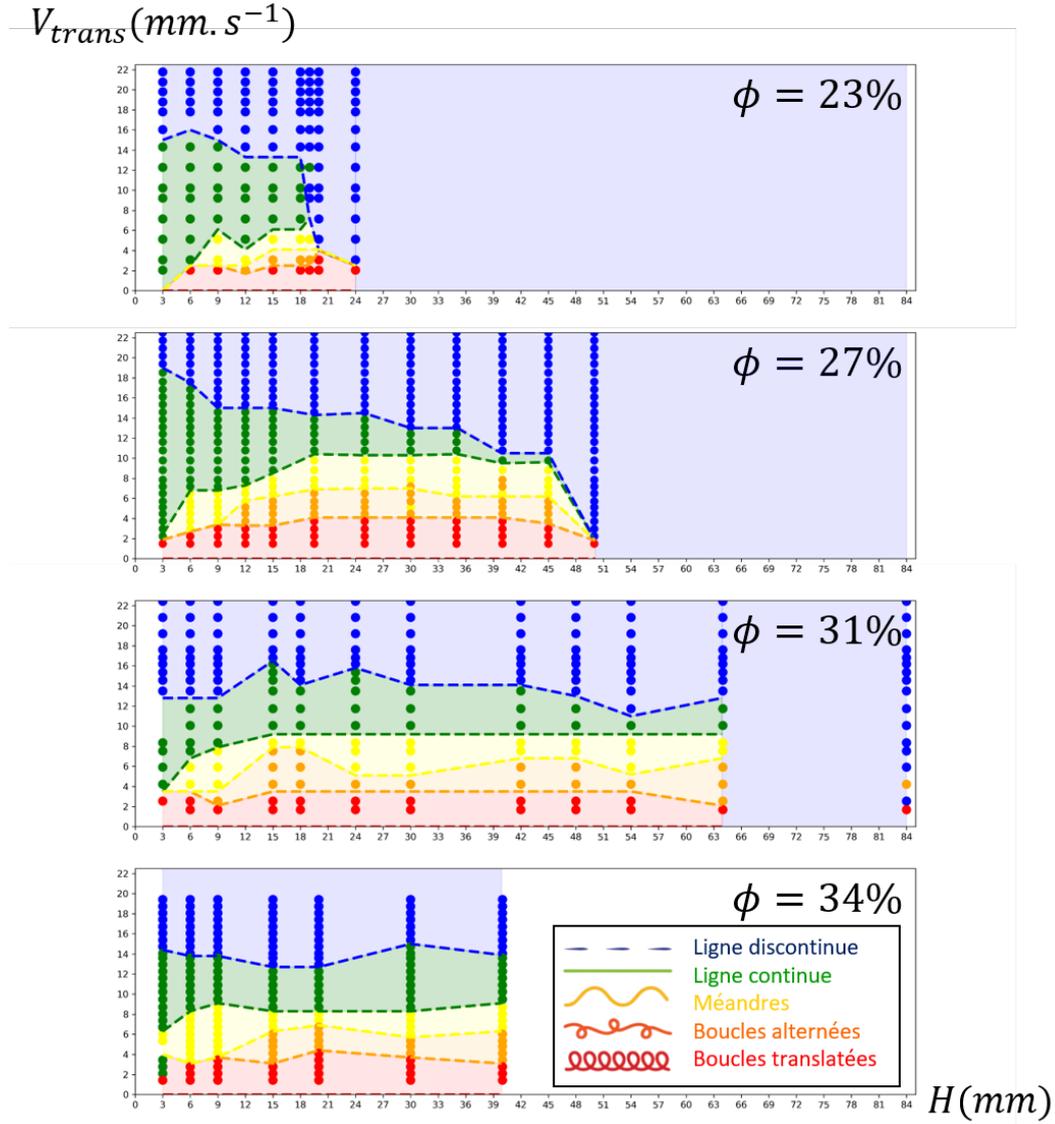


FIGURE 5.8 – Cartographies à  $D_0 = 3mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$  pour des concentrations en kaolin de 23, 27, 31 et 34%. Les données à 34% sont incomplètes mais apportent tout de même de l'information sur les hauteurs faibles.

d'autres valeurs particulières du rapport des vitesses, et seulement en fonction de ce rapport, toutes choses égales par ailleurs. On introduit donc une vitesse adimensionnée  $V^*$ , telle que

$$V^* = \frac{V_{trans}}{\bar{V}_{sortie}} \quad (5.1)$$

### 5.3. VARIATIONS EN FONCTION DES PARAMÈTRES DE CONCENTRATION, VITESSE ET DIAMÈTRE

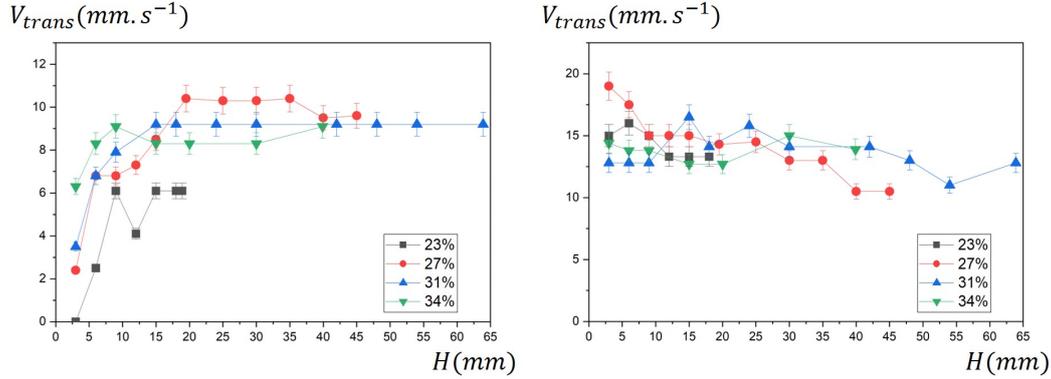


FIGURE 5.9 –  $V_{trans}(H)$  ( $D_0 = 3mm$ ,  $\bar{V}_{sortie} = 10mm \cdot s^{-1}$  et  $\phi$  varie entre = 23% et = 34%). À gauche, courbes frontière entre les lignes continues et les méandres et, à droite, entre les lignes continues et discontinues.

$V^*$  est le rapport entre les vitesses de translation et de sortie. En fait, on peut avoir une description un peu plus géométrique de  $V^*$ . En multipliant par le temps d'extrusion en haut et en bas, cette vitesse adimensionnée devient un rapport de longueurs, entre la longueur parcourue par la buse et la longueur de filament extrudé.  $V^*$  donne une compréhension de la quantité de matière extrudée, et de la façon dont cette quantité de matière occupe l'espace parcouru.

Pour vérifier la validité de cette hypothèse on compare les résultats obtenus avec deux vitesses de translation très différentes,  $10mm \cdot s^{-1}$  et  $50mm \cdot s^{-1}$ , et, pour chaque vitesse, on construit une cartographie à  $D_0 = 10mm$  en faisant varier la hauteur  $H$  et la vitesse de sortie  $V_{sortie}$ . On montre les cartographies superposées à  $V_{trans} = 10mm \cdot s^{-1}$  et  $V_{trans} = 50mm \cdot s^{-1}$  dans une représentation  $V^*(H)$  (figure 5.10). Comme  $V^*$  est proportionnelle à  $V_{trans}$ , la cartographie a le même aspect que les figures 5.6 et 5.8. Les paramètres expérimentaux de hauteurs et de vitesses de sortie à  $V_{trans} = 50mm \cdot s^{-1}$  sont choisis de manière à repérer les deux frontières autour du domaine des lignes continues, et sont marquées par des carrés encadrés en rouge. Le résultat important de ces cartographies est qu'au premier ordre, les deux cartographies se superposent alors que les vitesses de translation et d'extrusion sont très différentes. Cette adimensionnalisation avec  $V^*$ , qui permet d'utiliser un unique paramètre pour les vitesses, est donc pertinente.

On peut néanmoins relever quelques différences entre les cartographies. À  $50mm \cdot s^{-1}$ , le domaine de la ligne continue s'élargit. La frontière entre les lignes continues et discontinues est relevée à  $V^* = 1.7$  au lieu de  $V^* = 1.4$  pour la hauteur  $H = 6cm$ , et la frontière

### 5.3. VARIATIONS EN FONCTION DES PARAMÈTRES DE CONCENTRATION, VITESSE ET DIAMÈTRE

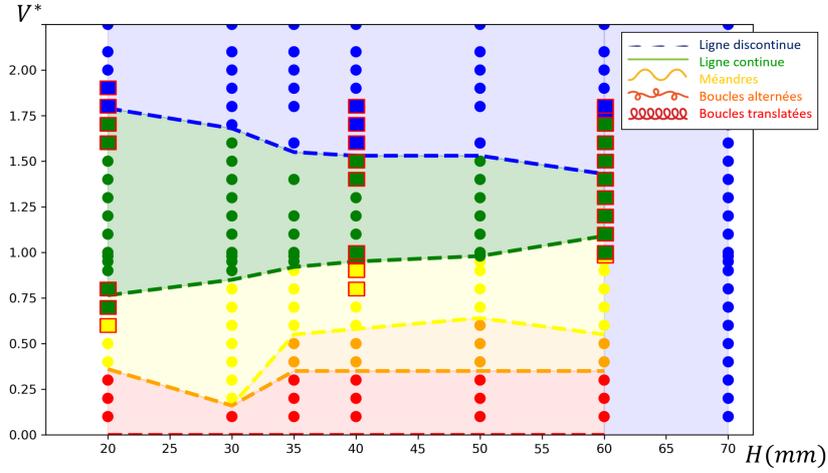


FIGURE 5.10 – Cartographie des motifs pour des vitesses de translation  $V_{trans} = 10\text{mm.s}^{-1}$  (points) et  $V_{trans} = 50\text{mm.s}^{-1}$  (carrés encadrés en rouge). Pour les deux vitesses de translation,  $D_0 = 10\text{mm}$  et  $\phi = 27\%$

entre méandres et lignes continues est abaissée de 0.1 pour  $H = 2\text{cm}$  et  $H = 6\text{cm}$ . Ces différences sont la marque qu'il y a eu un effet de l'augmentation de la vitesse, qu'on peut associer à un effet visqueux. Pour  $V^* = 1.5$ , à  $V_{trans} = 10\text{mm.s}^{-1}$ ,  $\bar{V}_{sortie} = 6.7\text{mm.s}^{-1}$ , alors qu'à  $V_{trans} = 50\text{mm.s}^{-1}$ ,  $\bar{V}_{sortie} = 33\text{mm.s}^{-1}$ . Dans l'expérience de formation de gouttes par gravité, des vitesses de sortie comparables commencent à entraîner un allongement de la forme de la goutte parce que la goutte a moins de temps pour se séparer (voir section 4.2). Sur les images de gouttes, la longueur d'une goutte augmente effectivement de  $5.6\text{cm}$  à  $6.4\text{cm}$  entre les vitesses de  $9\text{mm.s}^{-1}$  et  $36\text{mm.s}^{-1}$ . La deuxième différence concerne l'apparition des méandres. Pour les hauteurs de 2 et 6cm, les méandres se forment à des  $V^*$  un peu plus faibles. Dans l'extrusion (sans translation) d'un filament visqueux, RIBE, HABIBI et BONN 2011 avaient noté que l'enroulement d'un filament visqueux donnait lieu à un simple écoulement axisymétrique si la vitesse de sortie était assez grande (la valeur limite dépend de la hauteur et de la viscosité du filament). Dans ce cas, l'énergie cinétique importante force l'écrasement du filament. S'il y a un effet similaire pour le kaolin, l'énergie cinétique peut être absorbée par un léger écrasement additionnel, ce qui entraîne la formation d'une ligne à la place d'un méandre.

Ainsi, des effets visqueux semblent se faire sentir dans certains cas, et peuvent empêcher une classification générale à partir du nombre adimensionnel  $V^*$ . Ces effets pourraient être exploitables en pratique, notamment parce qu'ils étendent le domaine de ligne

continue à une hauteur donnée, mais ici on imprimera à des vitesses plus faibles pour les éviter. Dans ces conditions, il n'y aura pas d'effet visqueux. De cette manière, la variation de la vitesse  $V^*$  est essentiellement une variation de la longueur de matériau extrudé par rapport à la longueur parcourue. Le filament, selon qu'il y a trop ou pas assez de longueur extrudée, va se déformer pour occuper l'espace qui lui est donné d'une manière qui tiendra compte de la hauteur.

### 5.3.3 Influence du diamètre d'extrusion

Comme l'intérêt de la vitesse adimensionnée  $V^*$  a été démontré dans la section 5.3.2, on montre 4 cartographies en  $V^*(H)$ , construites avec des diamètres de 1.2, 3, 10 et 20mm sur la figure 5.11. Dans cette représentation, la hauteur critique  $H_c$  au-dessus de laquelle le filament casse systématiquement varie entre  $H \approx 3.6cm$  pour  $D_0 = 1.2mm$  et  $H \approx 7.5cm$  pour  $D_0 = 2cm$ . Juste avant sa séparation, une goutte a un cône en son bas et un double cône en son haut. Ces cônes ont une pente à peu près constante quel que soit le diamètre de la buse, ce qui les amène à chacun augmenter la longueur de la goutte de l'ordre du rayon de la buse. Cette observation au premier ordre donne un allongement de  $H_c$  par rapport à  $D_0 = 1.2mm$  d'environ 0.5cm, 1.5cm et 3cm pour les diamètres de buse de 3mm, 1cm et 2cm respectivement. Moyennant cette correction du diamètre, on verra dans la section 5.4.2 que cette cassure systématique est essentiellement liée à une hauteur  $H$  qui dépend de la concentration en kaolin.

Nous sommes spécialement intéressés dans cette section par les évolutions des domaines d'existence des différents motifs continus, donc aux hauteurs  $H < H_c$ , pour lesquelles, quel que soit le diamètre, l'interaction entre le filament et le plateau joue pleinement. On constate que plus le diamètre augmente, plus le domaine des boucles alternées (en orange) apparaît tard sur les cartographies (les premières boucles alternées sont encadrées en noir sur la figure 5.11), mais la valeur de  $\frac{H}{D_0}$  à laquelle les premières boucles alternées apparaissent vaut systématiquement entre 3 et 5. L'apparition de ces boucles dépend en fait du rapport entre la hauteur et le diamètre.

Compte tenu de ces observations il est naturel d'envisager une certaine similitude physique des mécanismes observés et donc de représenter les données en fonction d'un paramètre de hauteur adimensionné  $H^*$  tel que

$$H^* = \frac{H}{D_0} \quad (5.2)$$

$H^*$  est le rapport entre la hauteur de dépôt et le diamètre de la buse, et peut se comprendre comme un rapport d'aspect. Il avait déjà été introduit dans les études de RIBE

5.3. VARIATIONS EN FONCTION DES PARAMÈTRES DE CONCENTRATION, VITESSE ET DIAMÈTRE

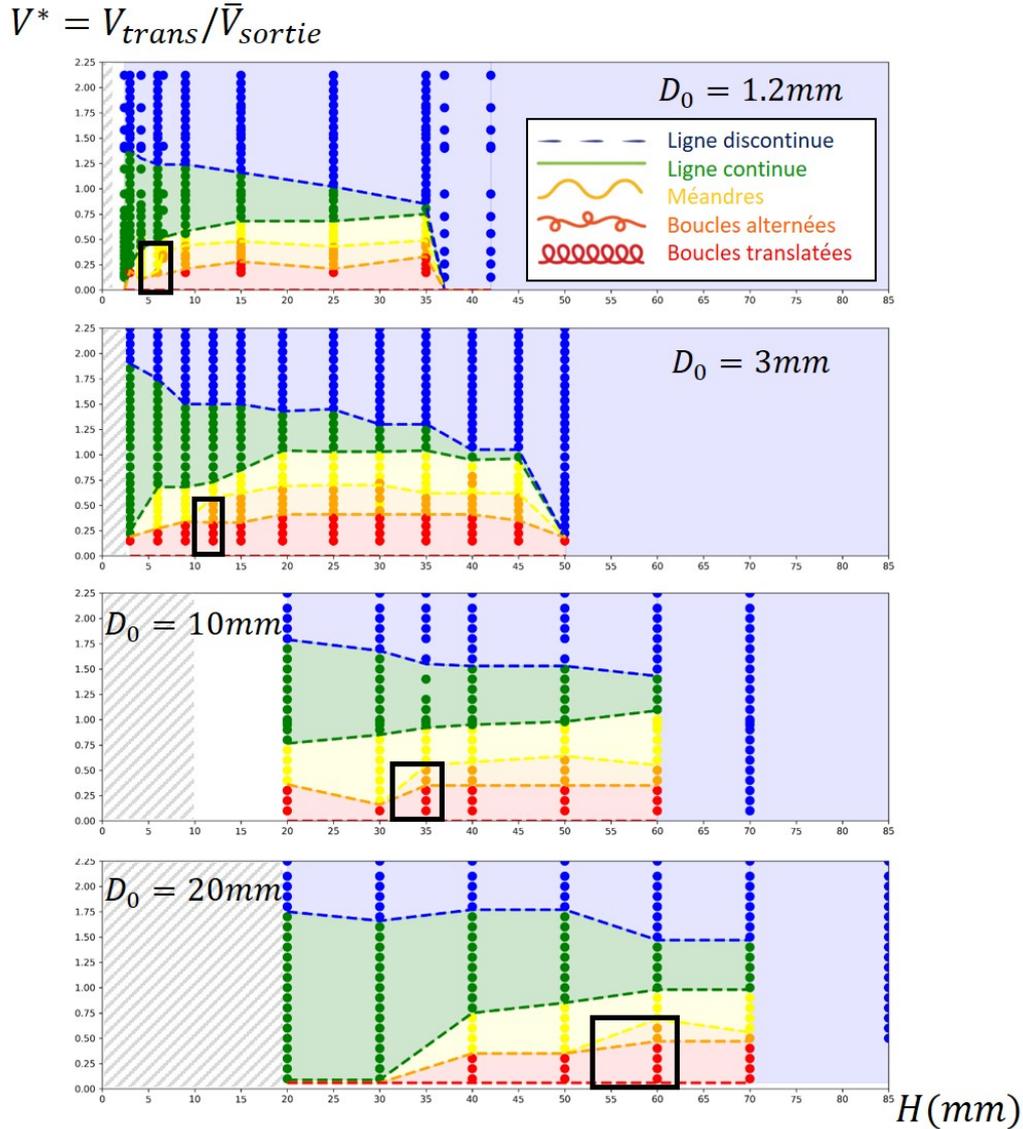


FIGURE 5.11 – Cartographies avec  $\phi = 27\%$  pour les diamètres de 1.2, 3, 10 et 20mm. Les rectangles noirs repèrent l'apparition des boucles alternées. Les surfaces grisées à gauche de chaque cartographie correspondent aux hauteurs inférieures au diamètre de la buse, en dehors du cadre de nos expériences.

2004, YUK et ZHAO 2018 ou encore LE MERRER, QUÉRÉ et CLANET 2012, où il est utilisé pour les critères de flambement visqueux et élastiques et comme paramètre pilotant les motifs. Plus généralement, dans des écoulements pour lesquels la courbure ou la finesse jouent un rôle, l'utilisation d'un paramètre d'allongement est généralement pertinente.

On peut maintenant vérifier quantitativement la pertinence de ce paramètre adimensionnel. Comme dans la section 5.2, on isole les frontières au-dessus et en-dessous du domaine des lignes continues. Pour chaque frontière, on trace les graphes donnant  $V^*(H)$  et  $V^*(H^*)$  (figure 5.12). On note tout de suite la singularité des motifs obtenus pour le diamètre 1.2mm que l'on attribue à des effets de tension de surface, susceptibles de se développer de manière plus importante pour un diamètre plus petit. On se concentre alors sur les frontières observées pour des diamètres de 3, 10 et 20mm. Les courbes de la frontière lignes discontinues/continues (figure 5.12 à droite) semblent ne pas avoir de lien sur le graphe où  $H$  est en abscisse. Les points sont toutefois majoritairement situés autour de  $V^* = 1.5$ . En revanche, les courbes se superposent très bien sur le graphe en  $H^*$ . On relève une première légère décroissance pour  $H^* < 3$ , puis  $V^*$  devient à peu près constante et vaut autour de 1.5. La courbe du diamètre  $D_0 = 1.2mm$  suit la même tendance en étant translatée vers le bas.

Concernant la frontière entre méandres et lignes continues (figure 5.12 à gauche), le graphe en  $H$  montre que ces courbes ont une forme analogue et vont de  $V^* = 0$  à 1. Finalement, elles se superposent également relativement bien dans un graphe avec  $H^*$  en abscisses. Les courbes ainsi superposées suggèrent que les méandres apparaissent pour des  $V^*$  plus grandes quand l'allongement  $H^*$  augmente, et que la frontière tend vers  $V^* = 1$  lorsque  $H^*$  tend vers l'infini (en fait, cette valeur est quasiment atteinte à  $H^* = 5$ ).

Au bilan, cette représentation en  $V^*(H^*)$  est donc bien pertinente pour observer les frontières sous forme adimensionnelle. En pratique, cela signifie donc que si un filament est plutôt allongé, c'est-à-dire si le rapport d'aspect  $H^*$  est grand, il pourra prendre plus de configurations sur une plus grande gamme de vitesses  $V^*$  que s'il l'est peu.

#### 5.3.4 Bilan (a)dimensionnel

On peut maintenant faire le bilan des analyses des cartographies. On a vu que les lignes discontinues existaient au-dessus d'une valeur limite de  $V^*$  qui, au premier ordre, ne semble varier ni avec le diamètre ni avec la concentration, et vaut environ  $V_c^* = 1.5$ . Ces lignes discontinues apparaissent aussi au-dessus d'une valeur  $H_c$  qui varie de manière proportionnelle au seuil. La formation de méandres, elle, dépend visiblement du paramètre d'allongement  $H^*$ . Alors que les méandres semblent exister pour des valeurs de  $H^*$  faibles (dès 1.5), les motifs plus complexes de boucles "ont besoin de plus d'espace" et donc d'un  $H^*$  plus grand pour se mettre en place. Ces observations nous fournissent

### 5.3. VARIATIONS EN FONCTION DES PARAMÈTRES DE CONCENTRATION, VITESSE ET DIAMÈTRE

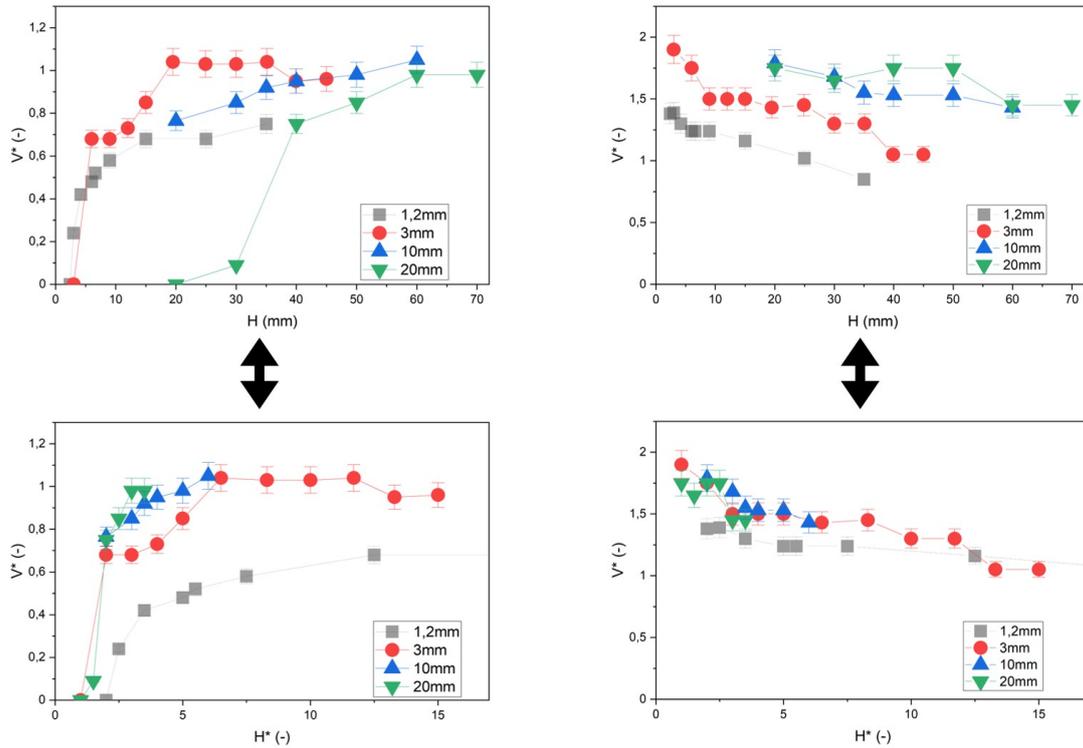


FIGURE 5.12 – Dépôts de kaolin à  $\phi = 27\%$  et à des diamètres de buse de 1.2, 3, 10 et 20mm. À gauche, courbes frontières entre les lignes continues et les méandres. À droite, courbes frontières entre les lignes continues et discontinues. Pour chaque type de frontière, on trace en haut  $V^*(H)$  et en bas  $V^*(H^*)$ .

la matière pour développer une compréhension physique des différentes parties de la cartographie.

L'indépendance de la forme des dépôts vis à vis de la concentration a suggéré que les effets visqueux ne jouent pas de rôle dans l'écoulement du dépôt. Nous avons ensuite observé que les frontières entre les motifs sont essentiellement contrôlées par le rapport d'aspect du filament. Cela implique que la gravité, qui varie avec la hauteur et non avec le rapport d'aspect, est aussi négligeable dans ces dépôts. Dans ces écoulements les effets de la gravité, de la viscosité, et certainement également de l'inertie, sont donc négligeables. Dans ces conditions l'écoulement est uniquement piloté par les conditions aux limites du problème. Ces conditions sont les paramètres de hauteur et de vitesse, c'est-à-dire  $V_{trans}$ ,  $\bar{V}_{sortie}$ ,  $H$  et  $D_0$ . Il est alors attendu que des paramètres adimensionnels qui utilisent ces 4 paramètres dimensionnels puissent décrire le problème. Le fait que les formes de dépôts ne varient qu'avec les paramètres adimensionnels  $H^*$  et  $V^*$  montre

que ce sont les bons paramètres pour décrire le problème du dépôt, et confirme donc a posteriori que l'inertie, la gravité et la viscosité jouent un rôle négligeable dans les dépôts.

Dans la suite de ce chapitre, nous analysons plus en détail les écoulements de façon à voir s'il est possible de quantifier et prédire les différentes frontières entre les motifs. Pour cela, nous allons mettre en relation les formes des dépôts et les expériences des chapitres précédents, réalisées sur des écoulements contrôlés.

## 5.4 Analyse théorique

### 5.4.1 Flambement

Les flambements élastique et visqueux déclenchent la formation de motifs élastiques et visqueux. Puisque le kaolin est essentiellement plastique, on suppose que c'est ici un flambement plastique qui a déclenché la formation des méandres et des boucles. Nous avons dérivé un critère de flambement plastique en cohérence avec le comportement de la suspension de kaolin. Le développement du calcul, basé sur la minimisation de la puissance plastique dissipée, se trouve en annexe C. Le critère indique qu'il y aura flambement à condition que

$$\frac{\Delta H}{H} > \alpha * \frac{D_0^2}{H^2} \quad (5.3)$$

$$\text{où } \alpha = \frac{8}{9\pi^2} \quad (5.4)$$

et où  $\Delta H$  est la hauteur de filament écrasé depuis l'instant initial où le filament avait une hauteur  $H$ .

Pour évaluer le démarrage du flambement pour les dépôts, on peut réécrire le critère ci-dessus en utilisant  $V^*(H^*)$ , en constatant le lien entre  $H$  et  $\Delta H$  du flambement d'une part, et les vitesses de sortie et de translation de l'impression d'autre part.  $H$  est la longueur du cylindre non déformé. Dans l'impression, la hauteur  $H$  est la distance entre le buse et la surface, mais, de manière théorique, c'est aussi la longueur de filament extrudé non déformé  $L_{sortie} = \bar{V}_{sortie} * t$  avec  $t$  le temps nécessaire pour extruder un filament de longueur  $H$  (voir figure 5.13). Dans le flambement, le cylindre de longueur  $H$  est comprimé jusqu'à atteindre une longueur  $H - \Delta H$ . Dans l'impression, le filament de longueur  $L_{sortie}$  est aussi comprimé puisque son dépôt ne peut se faire que sur la longueur  $L_{trans} = V_{trans} * t$ . Ainsi, les situations de flambement et d'impression sont

analogues si on considère que  $D_0$  est le rayon initial dans les deux cas. Alors,

$$L_{sortie} = \bar{V}_{sortie} * t = H \quad (5.5)$$

$$L_{trans} = V_{trans} * t = H - \Delta H \quad (5.6)$$

$$\text{donc } \frac{L_{trans}}{L_{sortie}} = V^* = 1 - \frac{\Delta H}{H} \quad (5.7)$$

Le critère de flambement se réécrit donc

$$V^* < 1 - \frac{\alpha}{H^{*2}} \quad (5.8)$$

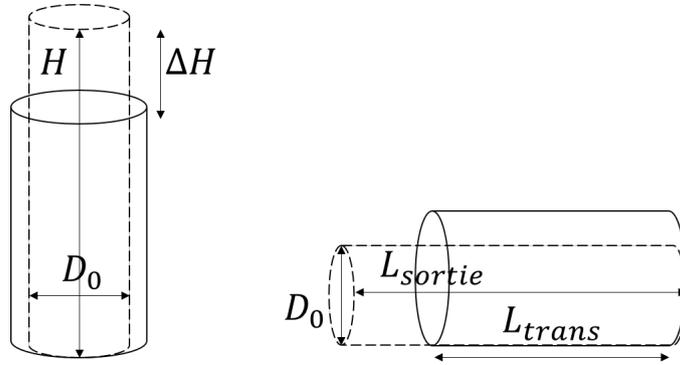


FIGURE 5.13 – À gauche, cas normal du flambement, avec  $H$  la hauteur initiale du filament non déformé, et  $\Delta H$  la hauteur écrasée. À droite, cas de l'impression, avec  $L_{sortie}$  la longueur théorique qu'aurait le filament sans déformation, et  $L_{trans}$  la longueur sur laquelle se dépose réellement le filament

Ce critère rend bien compte des observations qu'on a pu faire sur des premières expériences de flambement, qu'on a aussi ajoutées dans l'annexe C. Mais dans une extrusion avec translation de la buse, comme c'est le cas pour la formation de motifs, la configuration du filament est différente du cas d'étude expérimental du flambement, où le filament était écrasé sur une surface immobile. Dans ce cas, le filament était totalement symétrique par rotation autour de son axe central. Dans le cas avec translation il ne l'est plus. Il est possible que le flambement soit perturbé par cette dissymétrie. Pour étudier cette question, on reprend les courbes frontières entre les méandres et les lignes continues de la section 5.3.1, auxquelles on ajoute le critère, en pointillés noirs, pour donner la figure 5.14. Il apparaît que le critère capture bien la tendance à la croissance puis le plateau de la courbe  $V^*(H^*)$ . Cependant, il l'atteint plus vite que dans les expériences de dépôt.

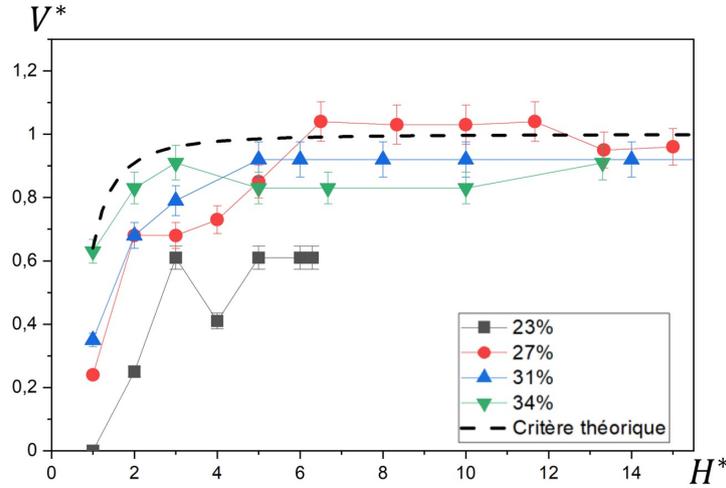


FIGURE 5.14 – Courbes frontières entre les lignes continues et les méandres à plusieurs concentrations (symboles pleins) et courbe frontière à partir du critère théorique de flambement (pointillés noirs)

Pour mieux capturer la compétition entre l'écrasement homogène et le flambement, on mesure le diamètre d'un filament déposé à différentes valeurs de  $V^*$  d'une cartographie. Sur la figure 5.15, on montre des données pour  $D_0 = 1.2mm$  et  $\phi = 27\%$  (cartographie en annexe D). Pour une hauteur  $H^*$  donnée, on voit que le diamètre du filament augmente quand  $V^*$  diminue seulement si le motif est une ligne continue. Le diamètre devient constant pour une valeur de  $V^*$  qui est systématiquement la valeur de frontière avec les méandres. Cela veut dire qu'une fois que le méandre se forme, donc que le flambement prend le dessus sur l'écrasement, le filament arrête complètement de s'écraser.

Par l'analyse des cartographies, on avait conclu que la frontière entre la ligne continue et les méandres ne dépend pas de la concentration, et est décrite uniquement par les paramètres  $H^*$  et  $V^*$ . Le critère de flambement plastique réécrit dans le formalisme des motifs est bien de la forme  $V^*(H^*)$ , en cohérence avec la conclusion des cartographies. Il surévalue la valeur de la frontière, mais capture tout de même la tendance des courbes expérimentales.

#### 5.4.2 Frontière lignes continues/discontinues à partir des déformations d'une goutte

On cherche ici à prédire les paramètres d'impression entraînant la rupture du filament. Cette rupture survient dans 2 configurations différentes : au-dessus de la hauteur

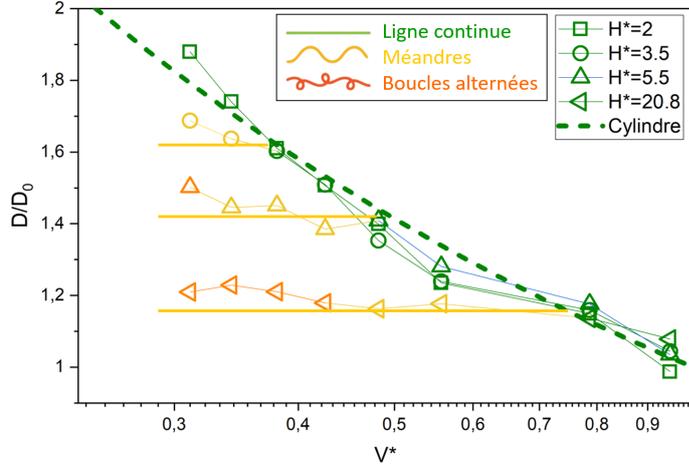


FIGURE 5.15 – Evolution du diamètre  $D/D_0$  d'un filament déposé en fonction de  $V^*$ , pour des dépôts à  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 1.2\text{mm}$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ .  $H^*$  varie entre 2 et 20.8. La courbe en pointillés verts donne le diamètre d'un cylindre droit en fonction de  $V^*$ . Les traits jaunes sont un repère visuel.

$H_c$  ou au-dessus de la vitesse  $V_c^*$ .

Dans le premier cas, la surface n'est jamais en contact avec le filament (tant que ce dernier est relié à la buse). La force qui s'applique sur le filament est la force imposée par la gravité, donc la configuration du filament est celle traitée dans le chapitre 3. Nous avons vu que la longueur totale entre le bas de la goutte et la buse résulte de la somme de toutes les déformations solides et/ou liquides des couches successives du filament. Sa prévision est complexe, mais, à partir de l'étude de la goutte, on peut simplement considérer que cette hauteur critique se mesure directement sur l'image d'un filament juste avant la séparation dans l'expérience de gouttes. Dans l'expérience de dépôts,  $H_c$  augmente un peu avec le diamètre de buse, comme la longueur de la goutte augmente légèrement avec son diamètre, du fait de la forme conique de la rupture.

Dans le second cas, pour lequel la rupture survient à  $V_c^*$ , le filament est en contact avec la surface et, comme  $V_c^*$  est supérieure à 1, le filament est soumis à la traction de la buse. On a vu par les cartographies que ce problème ne dépendait pas de la hauteur au premier ordre, donc, contrairement au cas précédent, le rôle de la gravité peut ici être négligé. Considérons une vitesse adimensionnée  $V_1^*$  légèrement inférieure à  $V_c^*$ , où le dépôt se fait encore de manière linéaire droite. L'écoulement est permanent, et le filament se dépose sous forme cylindrique en s'affinant de manière à respecter la conservation du volume (un tel cas est montré sur la figure 5.17 en haut). Ainsi, le rayon du filament

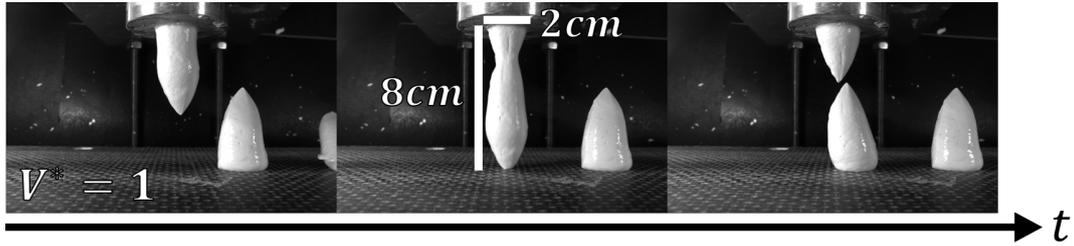


FIGURE 5.16 – Dépôt de filament de kaolin à  $\phi = 27\%$  filmé de profil. La hauteur  $H = 8\text{cm}$  est supérieure à  $H_c$ , ce qui provoque la rupture du filament sous forme de goutte

déposé vaut  $R_1$  et est constant sur toute la ligne déposée. On comprend donc que la valeur de  $V^*$  impose une déformation radiale associée. Si cette déformation est supérieure à une déformation seuil que peut supporter le filament, alors il entrera dans son régime liquide. Comme ce sont les déformations qui sont imposées, un dépassement du seuil n'entraîne pas une séparation rapide comme pour la goutte. Ici, le simple dépassement du seuil ne suffit pas pour satisfaire la demande en déformation, il faut que le filament continue de se déformer. Il le fait de manière préférentielle là où il est plus mince, ce qui résulte finalement en une cassure, mais plus lente (figure 5.17 en bas).

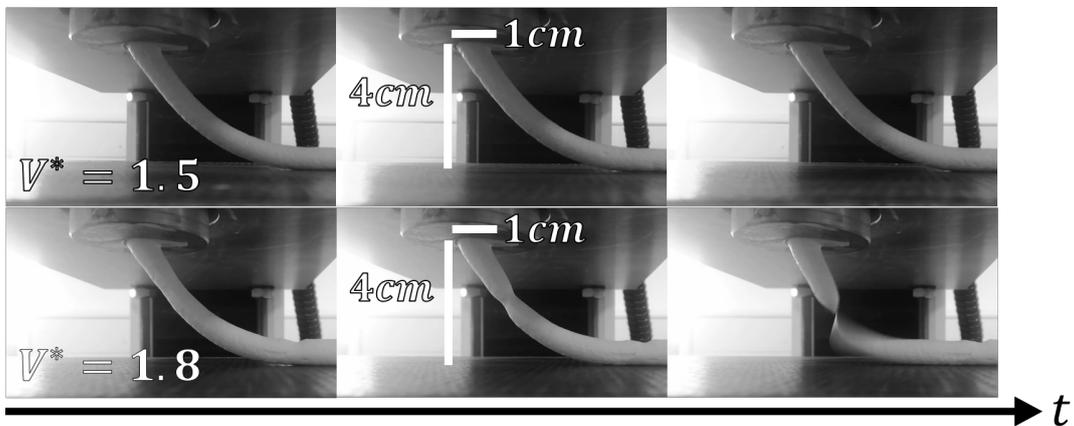


FIGURE 5.17 – Dépôt de filament de kaolin à  $\phi = 27\%$  filmé de profil. En haut,  $V^* = 1.5$  et en bas,  $V^* = 1.8$ .

Ce problème peut se rapprocher de l'éloignement de deux plaques décrit dans le chapitre 1.3.4. Dans un telle expérience, une traction uniaxiale est imposée en contrôlant la vitesse d'éloignement des deux extrémités. Dans les dépôts, la vitesse d'éloignement d'une seule extrémité est contrôlée. À la différence de l'éloignement des plaques, dans

le dépôt la traction n'est pas uniaxiale. Néanmoins, on peut voir sur la figure 5.17 que la courbure du filament est faible en son milieu, qui est l'endroit où il casse. D'après le chapitre 3, les déformations devraient y être majoritairement élongationnelles. On suppose donc que l'écoulement est une élongation pure. Alors il y a rupture lorsque le rayon que l'on attendrait si le dépôt était linéaire continu est inférieur au rayon seuil en élongation  $R_c$ . Ce rayon a été mesuré dans l'expérience de gouttes, et la procédure de la mesure est détaillée dans la section 4.1. Pour les concentrations en kaolin de  $\phi = 23, 27$  et  $31\%$ , on a trouvé  $R_c/R_0$  à peu près constant égal à  $0.85$ . En considérant qu'il y a cassure pour le même  $V_c^*$  pour lequel il y a dépassement de la déformation seuil et en faisant l'hypothèse que le dépôt linéaire continu est cylindrique, on peut utiliser la conservation du volume pour trouver

$$V_c^* = \left(\frac{R_0}{R_c}\right)^2 = 1.38 \quad (5.9)$$

Cette valeur est en bon accord avec les données des cartographies. En particulier, on retrouve l'indépendance de  $V_c^*$  vis-à-vis de la concentration puisque la déformation seuil du kaolin en élongation est approximativement la même aux 3 concentrations testées. L'hypothèse de l'élongation pure est plus incertaine quand la courbure est importante, donc aux faibles valeurs de  $H^*$ . Pour  $H^* < 3$ , on avait justement relevé une légère augmentation de  $V^*$  frontière (figure 5.12 par exemple). Il est possible que dans ce cas du cisaillement s'ajoute à la traction, et que le filament puisse ainsi se déformer un peu plus.

Compte tenu du très bon accord entre les caractéristiques des dépôts observés et les prédictions à partir des mesures en élongation contrôlées, on peut imaginer à l'inverse une méthode de rhéométrie permettant de déterminer une déformation seuil qui, a priori, est une déformation d'élongation en déposant des lignes et en balayant plusieurs  $V^*$ . Cette technique, que nous n'avons pas poussée plus loin, est rendue particulièrement intéressante par le caractère permanent de l'écoulement de dépôt, qui revient à faire une infinité d'expériences d'élongation sur des petits échantillons qui se suivent.

### 5.4.3 Cartographie avec les frontières théoriques

Ce travail théorique est regroupé dans une cartographie  $(H^*, V^*)$  des motifs de dépôt (figure 5.18). Pour des vitesses inférieures à celles de la frontière entre lignes continues et méandres ( $V^* < 1 - \frac{\alpha}{H^{*2}}$ ), les valeurs de paramètres pour lesquels le filament se dépose plutôt sous forme de méandres, boucles alternées ou boucles translattées n'ont pas été déterminées théoriquement. Toutefois, la cohérence de l'étude avec uniquement les paramètres adimensionnels  $H^*$  et  $V^*$  a montré que les effets visqueux, gravitaires et

inertiels étaient faibles, et que les conditions aux limites régissaient le problème. Dans ce cas, on a montré qu'à partir d'une certaine quantité d'écrasement, le filament se met à flamber pour occuper l'espace qui lui est donné sans que son diamètre n'augmente. Il devrait alors chercher la manière la moins coûteuse énergétiquement pour occuper cet espace. En l'absence de viscosité, gravité ou inertie, l'ensemble des contraintes est réparti de manière homogène, donc il est préférable pour le filament de répartir ses déformations de façon homogène aussi. Il va alors chercher à minimiser sa courbure sur l'ensemble de sa longueur. Ce problème rejoint celui de l'Elastica (section 1.2.2) qui donne les solutions de la courbe qui minimise l'énergie de flexion (dans le cas de l'impression 3D, il peut aussi y avoir de la torsion). Cela donne une motivation théorique pour la présence des motifs de boucles alternées et translattées aux vitesses  $V^*$  faibles. Pour compléter cette cartographie théorique, nous prenons les valeurs issues de BRUN, AUDOLY et al. 2015, qui prévoient un domaine des boucles alternées entre 0.3 et 0.55 environ.

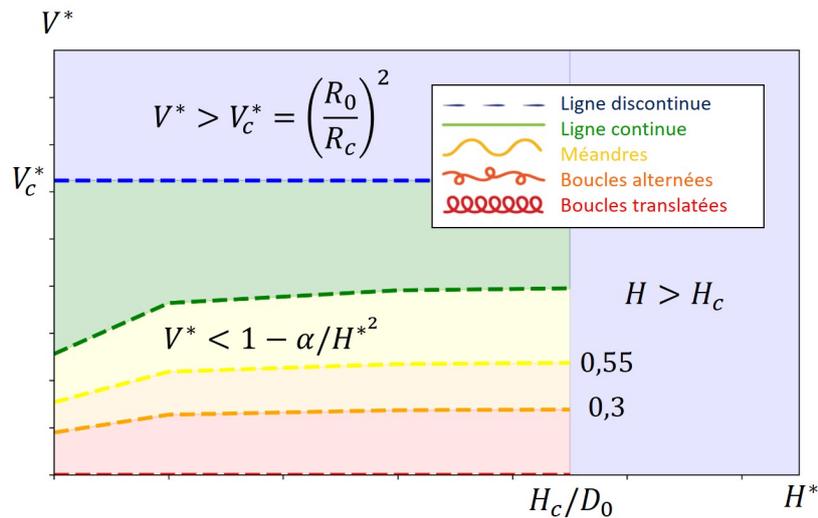


FIGURE 5.18 – Cartographie théorique des motifs de dépôts. On donne les équations des frontières lignes continues/discontinues et méandres/lignes continues.

## 5.5 Motifs du ciment

On travaille ici avec 2 formulations de ciment différentes : un ciment sans additif et un ciment avec de l'HEMC à 0.6% de la masse d'eau, les 2 ayant un rapport massique d'eau sur ciment  $\frac{E}{C} = 0.4$ . L'HEMC a un rôle double d'agent de viscosité, qui limite les effets de ségrégation, et d'augmentation du seuil de contrainte en cisaillement. Pour la

première raison, l'HEMC ou un équivalent est généralement ajouté dans les formulations de pâtes de ciment imprimables. Avec ces 2 formulations, des filaments sont extrudés et les dépôts sont analysés avec les outils qu'on a développés au long du chapitre. Compte tenu de notre travail de compréhension des mécanismes des dépôts d'un fluide à seuil modèle on peut ici construire a priori la cartographie théorique de chaque ciment, et la confronter avec les résultats de dépôts.

Sur la partie droite de la cartographie, on attend que le filament casse à une hauteur  $H_c$  qui est donnée par la longueur de la goutte, et vaut  $5.5cm$  pour le ciment sans polymère, et  $7cm$  pour celui avec. Aux hauteurs inférieures, on attend que le filament rompe par traction s'il atteint sa déformation seuil en élongation, qui vaut, en termes de rayon seuil,  $R_c = 0.8$  pour le ciment sans polymère et  $R_c = 0.7$  pour le ciment avec polymère. D'après l'équation 5.9, on attend  $V_c^* = 1.56$  et  $V_c^* = 2.04$  respectivement. L'apparition de méandres et de boucles ne dépend a priori pas des propriétés du ciment. Les cartographies attendues sont donc les suivantes

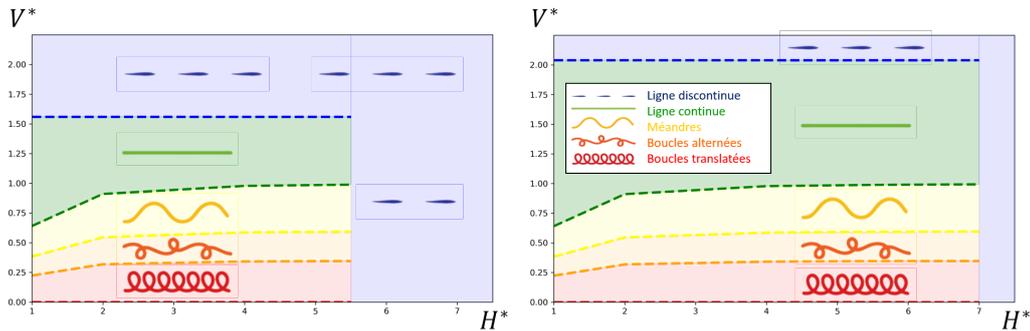


FIGURE 5.19 – Cartographies théoriques des motifs de dépôts des ciments étudiés. À gauche, celle du ciment sans additif, et à droite, celle du ciment avec 0.6% d'HEMC.

On procède maintenant aux dépôts des deux ciments. Ils sont effectués avec l'extrudeuse Instron munie d'une buse de 10mm, à  $V_{trans}$  fixée égale à  $10mm.s^{-1}$ . Bien qu'on ait suggéré dans la section 1.3.3 que le mélange au passage dans la réduction de section supprimait une partie des effets de thixotropie, on a limité le temps de séjour dans le contenant à moins de 10min. Dans ces conditions, on retrouve les 5 motifs que nous avons obtenus avec le kaolin, comme on peut le voir sur la figure 5.20. À partir de ces dépôts, on construit les cartographies  $V^*(H^*)$  associées à chacun des ciments. Par souci de temps, nous nous sommes limités aux hauteurs de 2, 4 et 6cm. On a donc cherché à avoir une comparaison qualitative des domaines de motifs plutôt qu'une détermination

précise des équations des frontières, qui aurait nécessité un plus grand nombre d'expériences. Sur la figure 5.21, on montre les données expérimentales (points) sur le fond et les frontières théoriques de chaque ciment.

Considérons d'abord à la cartographie du ciment sans additif. La cassure sous forme de gouttes apparaît entre les hauteurs de 4 et de 6cm, et celle sous forme de lignes discontinues se fait autour de  $V^* = 1.5$  pour  $H^* = 2$  et  $H^* = 4$ . La prédiction est en excellent accord avec les données de dépôts. À  $H^* = 4$ , les méandres apparaissent pour  $V^* = 0.85$ , ce qui est un peu en-dessous de ce qui était attendu mais dans l'incertitude des mesures, et à  $H^* = 2$ , on ne voit aucun méandre. Cela peut paraître étonnant car, pour un kaolin avec un seuil en élongation similaire, des méandres apparaissaient dès  $V^* < 0.8$ . Comme nous l'avons suggéré précédemment, il est possible qu'à cette hauteur, un écoulement de cisaillement commence à jouer un rôle important. Avec le ciment, cela peut avoir un effet très prononcé puisqu'on a montré que pour ce ciment avec un seuil élongationnel de 400Pa, le seuil en cisaillement vaut seulement 50Pa (section 4.4). Le cisaillement tendrait à faciliter l'écoulement, ce qui favoriserait le dépôt sous forme de ligne. Réciproquement, ces résultats montrent que les déformations sont principalement élongationnelles pour les écoulements qui ont lieu aux grandes hauteurs.

Concernant la cartographie du ciment avec polymère, on constate que le filament casse de nouveau à  $H = 6cm$ . Les photographies de gouttes suggéraient une cassure à une hauteur un peu supérieure. En revanche, la cassure par traction trouvée expérimentalement augmente à  $V^* = 2.1$ , exactement comme attendu à partir de notre calcul utilisant la déformation seuil. Cette fois, on continue d'observer des méandres à ( $V^* = 0.9, H^* = 4$ ), et on en voit aussi à  $H^* = 2$ . Comme le seuil en cisaillement de ce ciment vaut environ 150Pa, il est possible que l'effet de cisaillement, suggéré sur le ciment sans additif, soit plus faible.

Les ciments sans ou avec additif peuvent se déposer sous la forme de différents motifs en fonction des paramètres d'impression, comme ce qui avait été observé sur la kaolin. Les données d'élongation, pertinentes pour prédire les dépôts de kaolin, évaluent correctement les frontières entre les motifs de ciment. En accord avec la rhéométrie en élongation, le ciment avec polymère permet de faire des dépôts continus dans un domaine plus large que le ciment sans additif.

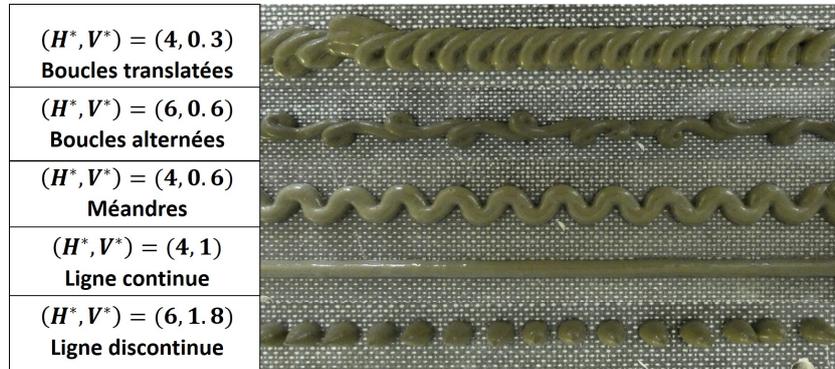


FIGURE 5.20 – Motifs du ciment sans additif à différentes valeurs de  $(H^*, V^*)$

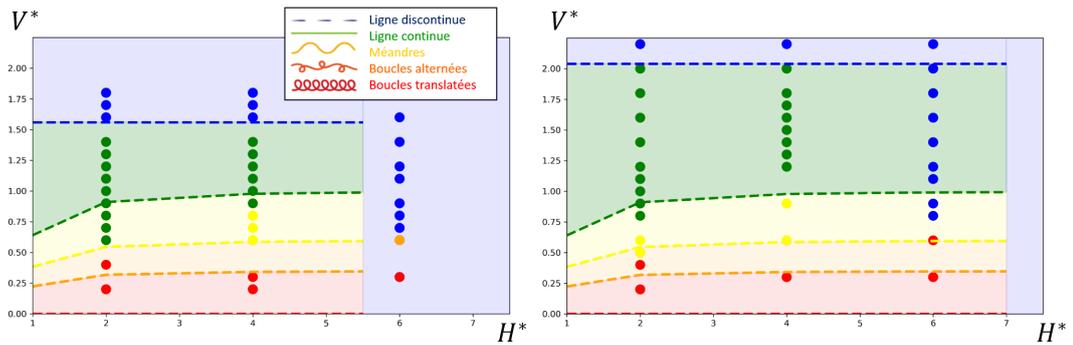


FIGURE 5.21 – Cartographies des ciments sans (à gauche) et avec HEMC (à droite). Les données expérimentales sont repérées par les points, et les frontières et le fond coloré sont théoriques.

# Conclusion

Nous nous sommes intéressés dans cette thèse aux formes que peuvent prendre les dépôts d'une impression 3D, et aux mécanismes d'écoulement qui conduisent à ces formes. Nous nous sommes placés pour cela dans le cadre de l'impression 3D par extrusion suivie de dépôt de matière. Après un bilan des possibilités de cette technique en termes de paramètres de hauteurs d'impression et de types de buse, nous avons choisi de nous intéresser au dépôt d'un filament par une buse cylindrique et une hauteur de buse supérieure à son diamètre. Les mécanismes de dépôt pour ces paramètres n'étaient pas bien compris jusque-là pour nos matériaux d'étude, les fluides à seuil. Nous nous sommes d'abord appuyés sur les recherches sur des matériaux plus "simples", des solides élastiques et des fluides visqueux, qui ont eux été étudiés dans les conditions d'impression de notre étude. Ces recherches ont montré que plusieurs motifs de dépôts existent et sont modélisables et prédictibles en fonction des paramètres de hauteur, de vitesse d'impression et de comportement du matériau. Lorsque le filament est déposé depuis une hauteur supérieure au diamètre, la géométrie de la situation fait qu'il est sollicité principalement en compression, étirement ou flexion, qui sont des écoulements d'élongation. Les propriétés d'élongation sont bien connues des solides élastiques et des fluides newtoniens, mais moins bien dans le cas des fluides à seuil.

Nous avons commencé par caractériser plusieurs fluides à seuil (gel de carbopol, émulsion d'huile dans l'eau, suspension de kaolin et suspension de ciment) en cisaillement (chapitre 2). La caractérisation de l'écoulement de cisaillement est bien connue et maîtrisée, et nous a permis d'établir les propriétés solides, seuil et liquides des fluides à seuil étudiés, de manière à avoir un comportement de référence connu.

Nous avons ensuite développé une technique de rhéométrie pour obtenir la loi de comportement en élongation et une technique de rhéométrie pratique pour le seuil en élongation, de manière à obtenir les propriétés d'écoulement qui seront mises en jeu au cours de l'impression 3D. Ces techniques consistent toutes les deux à extruder un filament de fluide à seuil depuis une grande hauteur, et à étudier ses déformations, dont le moteur est la gravité, au cours de son extrusion, jusqu'à sa rupture. Dans le chapitre 3,

on établit la relation entre la contrainte normale et la taux de déformation élongationnel (qu'on appelle aussi courbe d'écoulement) d'un fluide à seuil. Pour cela, nous filmons une extrusion complète d'un filament jusqu'à la séparation, et calculons les tenseurs des contraintes et des taux de déformation en chaque point du profil du filament et à chaque temps. Cela nous permet de montrer que le cisaillement, important en-dessous de la section de rayon minimum (appelée aussi section du pincement), est négligeable au niveau du pincement. En étudiant les données (de contrainte normale et taux de déformation élongationnel) du pincement au cours du temps sur des extrusions à des vitesses et diamètres de buse différents, nous établissons la courbe d'écoulement de chacun des fluides à seuil étudiés. Dans le chapitre 4, nous décrivons une technique qui permet de mesurer le seuil en élongation de ces matériaux de manière simple, grâce à un approfondissement de la compréhension du mécanisme de la séparation du filament. Lorsque les vitesses de sortie sont assez faibles, nous montrons que le volume sous le pincement cesse d'augmenter au moment où la section du pincement transite d'un comportement solide à un comportement liquide. Comme le pincement est soumis à des déformations élongationnelles, le rayon du pincement au moment de la transition donne la déformation élongationnelle au niveau du seuil. En connaissant ce rayon, il suffit alors de peser une goutte (filament après séparation) de fluide à seuil pour accéder à sa contrainte seuil en élongation. Les conditions pratiques pour utiliser cette technique sont résumées à la fin du chapitre 4. Ces études permettent donc une caractérisation des fluides à seuil en élongation au niveau et au-dessus du seuil. Une caractérisation du comportement sous le seuil est aussi possible mais a été laissée de côté. Nos résultats montrent que les trois fluides à seuil simples étudiés (gel de carbopol, émulsion et suspension de kaolin) ont un comportement similaire vis-à-vis de leur comportement en cisaillement. Pour les faire s'écouler à une vitesse donnée en élongation, il faut leur imposer une contrainte d'un facteur environ  $1.5 * \sqrt{3}$  fois supérieur à ce qu'il faudrait pour les faire s'écouler à la même vitesse en cisaillement. Cette contrainte est supérieure à ce qui est attendu du modèle généralement utilisé de Herschel-Bulkley en 3D, pour lequel la contrainte devrait augmenter d'un facteur  $\sqrt{3}$ . D'autres études visant essentiellement à calculer le seuil avaient aussi trouvé des écarts au modèle. Nous n'avons pas proposé de discussion critique de cet écart au modèle pour nos résultats, mais nous soutenons les idées déjà proposées que le critère de seuil pourrait manquer d'un terme (invariant du tenseur des contraintes). Ce terme interviendrait en élongation mais serait nul en cisaillement. Les résultats sur le ciment montrent que la contrainte seuil nécessaire pour le faire s'écouler en élongation est beaucoup plus grande qu'en cisaillement, d'un facteur d'environ  $5 * \sqrt{3}$ . Ce résultat étonnant pourrait être dû à des effets de coincement entre les particules de ciment.

Nous nous sommes ensuite intéressés aux dépôts par impression 3D de kaolin, dans les conditions de la buse cylindrique et de la hauteur de buse supérieure au diamètre (chapitre 5). Nous avons cartographié les motifs de dépôts obtenus par une campagne expérimentale dans laquelle nous avons fait varier les paramètres de concentration en kaolin, vitesse de sortie, vitesse de translation de la buse, diamètre et hauteur de buse. En étudiant l'influence de chacun de ces paramètres, nous avons montré que les forces de gravité, viscosité et inertie avaient peu d'influence sur les motifs dans les conditions d'impression explorées. Les motifs de dépôt des fluides à seuil sont essentiellement déterminés par les conditions aux limites du système, qui sont pilotées par deux paramètres adimensionnels :  $H^* = \frac{H}{D_0}$  (avec  $H$  la hauteur de buse et  $D_0$  le diamètre de buse), et  $V^* = \frac{V_{trans}}{V_{sortie}}$  (avec  $V_{trans}$  la vitesse de translation de la buse et  $\bar{V}_{sortie}$  la vitesse moyenne de sortie du filament). Ces résultats restent vrais en-dessous d'une hauteur de buse critique au-dessus de laquelle le filament se casse systématiquement sous forme de gouttes, dont le mécanisme est décrit par l'étude élongationnelle du chapitre 3. A partir des résultats du kaolin, nous avons poursuivi avec une étude plus courte sur le ciment. Les résultats sur les formes de dépôts de ciment semblent confirmer l'importance de considérer les propriétés d'élongation du ciment, et sont cohérents avec celles trouvées dans les chapitres 3 et 4.

### **Pespectives**

Des développements à partir de ces travaux nous semblent intéressants. Pour poursuivre la caractérisation des fluides à seuil en élongation, il serait utile de connaître les comportements dans l'état solide. Dans l'impression 3D, les déformations mises en jeu sont de l'ordre de la déformation nécessaire pour atteindre le seuil, et donc les déformations ayant lieu dans le domaine solide ne sont pas négligeables. Ensuite, le caractère thixotrope en élongation pourrait être abordé, en particulier parce qu'un matériau thixotrope est sensible aux vitesses d'impression, donc il serait possible de jouer avec la thixotropie pour modifier directement les formes des dépôts. Aujourd'hui, la thixotropie du ciment est prise en compte une fois que le dépôt s'est fait, pour maîtriser les contraintes de la masse des couches successives.

Notre étude sur l'impression 3D peut immédiatement être pensée de manière pratique pour éviter des phénomènes indésirables mis en jeu au cours d'une impression. Par exemple, des phénomènes de rupture au cours d'une impression peuvent survenir par flexion si un angle est déposé avec un rayon de courbure trop faible, ou bien par traction si le débit n'est pas adapté à la déformabilité du matériau. En revanche, comme nous nous sommes limités à des dépôts linéaires et sur une seule couche, une utilisation valorisant les motifs de dépôts est encore compliquée. Pourtant, il me semble que la compréhension

de ces motifs pourrait ouvrir de nouvelles stratégies d'impression. Cette idée repose sur le fait que les motifs permettent de créer des formes complexes alors que le chemin imposé est très simple. Pour essayer d'exploiter cette idée, nous avons fabriqué une buse (par impression 3D bien sûr) qui peut construire 3 lignes de filament de manière à ce que la ligne centrale fasse des méandres entre deux lignes droites (voir figure 5.22). Cette forme est connue pour améliorer la stabilité d'un mur au flambement (ROUSSEL 2018) tout en limitant la quantité de matière utilisée pour construire le mur. En tirant parti du motif de méandres, le déplacement de la buse resterait linéaire, ce qui pourrait améliorer la vitesse d'impression de telles structures, et/ou permettre d'imaginer des technologies d'impression plus simples qui nécessiteraient seulement de suivre des chemins droits. Pour développer cette idée ou d'autres s'appuyant sur les motifs de dépôts, il faudrait toutefois réussir à maîtriser la formation d'angles et le dépôt de couches successives.

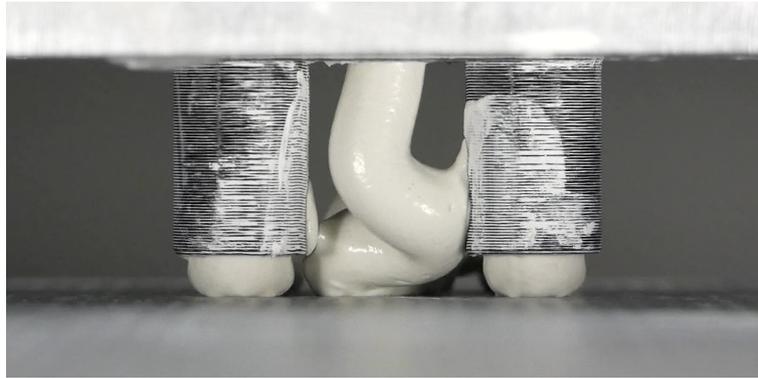


FIGURE 5.22 – La nouvelle buse révolutionnaire

# Bibliographie

- [1] R. E. ABOUZEID et al. « In situ mineralization of nano-hydroxyapatite on bifunctional cellulose nanofiber/polyvinyl alcohol/sodium alginate hydrogel using 3D printing ». en. In : *International Journal of Biological Macromolecules* 160 (oct. 2020), p. 538-547.
- [2] N. J. BALMFORTH, N. DUBASH et A. C. SLIM. « Extensional dynamics of viscoplastic filaments : II. Drips and bridges ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 165.19-20 (oct. 2010), p. 1147-1160.
- [3] Q. BARRAL et al. « Adhesion of yield stress fluids ». en. In : *Soft Matter* (2010), 10.1039.b922162j.
- [4] M. BERGOU, B. AUDOLY et al. « Discrete viscous threads ». en. In : *ACM Transactions on Graphics* 29.4 (juill. 2010), p. 1.
- [5] M. BERGOU, M. WARDETZKY et al. « Discrete elastic rods ». en. In : *ACM Transactions on Graphics* 27.3 (août 2008), p. 1-12.
- [6] J. BOUJLEL et P. COUSSOT. « Measuring the surface tension of yield stress fluids ». en. In : *Soft Matter* 9.25 (2013), p. 5898.
- [7] A. B. D. BROWN et al. « Orientational order in concentrated dispersions of plate-like kaolinite particles under shear ». en. In : *Journal of Rheology* 44.2 (mars 2000), p. 221-233.
- [8] C. BRUMAUD, R. BAUMANN et al. « Cellulose ethers and yield stress of cement pastes ». In : *Cement and Concrete Research* 55 (2014), p. 14-21.
- [9] C. BRUMAUD, H. BESSAIES-BEY et al. « Cellulose ethers and water retention ». In : *Cement and Concrete Research* 53 (2013), p. 176-184.
- [10] P.-T. BRUN, B. AUDOLY et al. « Liquid Ropes : A Geometrical Model for Thin Viscous Jet Instabilities ». en. In : *Physical Review Letters* 114.17 (avr. 2015), p. 174501.
- [11] P.-T. BRUN. « Dynamique des filaments élastiques et visqueux ». fr. In : *Thèse de doctorat* (2012), p. 137.

- [12] P.-T. BRUN, N. M. RIBE et B. AUDOLY. « A numerical investigation of the fluid mechanical sewing machine ». en. In : *Physics of Fluids* 24.4 (avr. 2012), p. 043102.
- [13] P. CARNEAU et al. « Layer pressing in concrete extrusion-based 3D-printing : Experiments and analysis ». en. In : *Cement and Concrete Research* 155 (mai 2022), p. 106741.
- [14] S. CHIU-WEBSTER et J. R. LISTER. « The fall of a viscous thread onto a moving surface : a ‘fluid-mechanical sewing machine’ ». en. In : *Journal of Fluid Mechanics* 569 (déc. 2006), p. 89.
- [15] P. COUSSOT et F. GAULARD. « Gravity flow instability of viscoplastic materials : The ketchup drip ». en. In : *Physical Review E* 72.3 (sept. 2005), p. 031409.
- [16] P. COUSSOT et S. ROGERS. « Oldroyd’s model and the foundation of modern rheology of yield stress fluids ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 295 (sept. 2021), p. 104604.
- [17] P. COUSSOT. *Rheometry of Pastes, Suspensions, and Granular Materials : Applications in Industry and Environment*. en. Hoboken, NJ, USA : John Wiley & Sons, Inc., mai 2005.
- [18] E. H. DILL. « Kirchhoff’s theory of rods ». en. In : *Archive for History of Exact Sciences* 44.1 (1992), p. 1-23.
- [19] Y. DIMAKOPOULOS et al. « The PAL (Penalized Augmented Lagrangian) method for computing viscoplastic flows : A new fast converging scheme ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 256 (juin 2018), p. 23-41.
- [20] L. DUCLOUÉ. « Comportement rhéologique des fluides à seuil aérés ». In : *Thèse de doctorat* (2014), p. 196.
- [21] N. DUCOULOMBIER et al. « The “Slugs-test” for extrusion-based additive manufacturing : Protocol, analysis and practical limits ». en. In : *Cement and Concrete Composites* 121 (août 2021), p. 104074.
- [22] V. M. ENTOV et A. L. YARIN. « The dynamics of thin liquid jets in air ». en. In : *Journal of Fluid Mechanics* 140 (mars 1984), p. 91-111.
- [23] L. EULER. *Methodus inveniendi lineas curvas maximi minimive proprietate gaudentes sive solutio problematis isoperimetrici latissimo sensu accepti*. Leonhard Euler, Opera Omnia / Opera mathematica. Birkhäuser Basel, 1744.
- [24] R. J. FLATT et Y. F. HOUST. « A simplified view on chemical effects perturbing the action of superplasticizers ». en. In : *Cement and Concrete Research* 31.8 (août 2001), p. 1169-1176.

- [25] A. GEFFRAULT et al. « Extensional gravity-rheometry (EGR) for yield stress fluids ». en. In : *Journal of Rheology* 65.5 (sept. 2021), p. 887-901.
- [26] G. GERMAN et V. BERTOLA. « Formation of viscoplastic drops by capillary breakup ». en. In : *Physics of Fluids* 22.3 (mars 2010), p. 033101.
- [27] M. HABIBI, Y. RAHMANI et al. « Buckling of Liquid Columns ». en. In : *Physical Review Letters* 104.7 (fév. 2010), p. 074301.
- [28] M. HABIBI, N. M. RIBE et D. BONN. « Coiling of Elastic Ropes ». en. In : *Physical Review Letters* 99.15 (oct. 2007), p. 154302.
- [29] M. HABIBI, J. NAJAFI et N. M. RIBE. « Pattern formation in a thread falling onto a moving belt : An “elastic sewing machine” ». en. In : *Physical Review E* 84.1 (juill. 2011), p. 016219.
- [30] M. LE MERRER, D. QUÉRÉ et C. CLANET. « Buckling of Viscous Filaments of a Fluid under Compression Stresses ». en. In : *Physical Review Letters* 109.6 (août 2012), p. 064502.
- [31] P. LIDON. « Effet d’ultrasons de puissance sur les matériaux mous : vers des matériaux « acousto-rhéologiques » ». fr. In : *Thèse de doctorat* (2016), p. 252.
- [32] A. LOVE. *A Treatise on the Mathematical Theory of Elasticity*. Cambridge University Press, 1927.
- [33] M. E. MACKAY. « The importance of rheological behavior in the additive manufacturing technique material extrusion ». en. In : *Journal of Rheology* 62.6 (nov. 2018), p. 1549-1561.
- [34] L. MAHADEVAN et J. B. KELLER. « Coiling of flexible ropes ». en. In : *Proceedings of the Royal Society A* (1996), p. 16.
- [35] L. MAHADEVAN et J. B. KELLER. « Periodic Folding of Thin Sheets ». en. In : *SIAM Journal on Applied Mathematics* (1999), p. 17.
- [36] M. MALEKI et al. « Liquid Rope Coiling on a Solid Surface ». en. In : *Physical Review Letters* 93.21 (nov. 2004), p. 214502.
- [37] D. MARCHON et al. « Hydration and rheology control of concrete for digital fabrication : Potential admixtures and cement chemistry ». en. In : *Cement and Concrete Research* 112 (oct. 2018), p. 96-110.
- [38] L. MARTINIE, H. BUGGISCH et N. WILLENBACHER. « Apparent elongational yield stress of soft matter ». en. In : *Journal of Rheology* 57.2 (mars 2013), p. 627-646.
- [39] G. H. MCKINLEY et A. TRIPATHI. « How to extract the Newtonian viscosity from capillary breakup measurements in a filament rheometer ». en. In : *Journal of Rheology* 44.3 (mai 2000), p. 653-670.

- [40] L. P. MIKKELSEN. « On the analysis of viscoplastic buckling ». en. In : *International Journal of Solids and Structures* 30.11 (1993), p. 1461-1472.
- [41] E. MITSOULIS et J. TSAMOPOULOS. « Numerical simulations of complex yield-stress fluid flows ». en. In : *Rheologica Acta* 56.3 (mars 2017), p. 231-258.
- [42] S. W. MORRIS et al. « Meandering instability of a viscous thread ». en. In : *Physical Review E* (2008), p. 11.
- [43] P. MOSCHOPOULOS et al. « Dynamics of viscoplastic filament stretching ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 284 (oct. 2020), p. 104371.
- [44] A. Z. NELSON et al. « Designing and transforming yield-stress fluids ». en. In : *Current Opinion in Solid State and Materials Science* 23.5 (oct. 2019), p. 100758.
- [45] K. NIEDZWIEDZ, H. BUGGISCH et N. WILLENBACHER. « Extensional rheology of concentrated emulsions as probed by capillary breakup elongational rheometry (CaBER) ». en. In : *Rheologica Acta* 49.11-12 (déc. 2010), p. 1103-1116.
- [46] J. G. OLDROYD. « A rational formulation of the equations of plastic flow for a Bingham solid ». en. In : *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* 43.1 (jan. 1947), p. 100-105.
- [47] T. C. PAPANASTASIOU. « Flows of Materials with Yield ». In : *Journal of Rheology* 31.5 (1987), p. 385-404.
- [48] A. PEREIRA, E. HACHEM et R. VALETTE. « Inertia-dominated coiling instabilities of power-law fluids ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 282 (août 2020), p. 104321.
- [49] A. PEREIRA, M. KHALLOUFI et al. « Buckling of Viscoplastic Bingham Fluid Filaments under Compression Stresses ». In : *13th World Congress on Computational Mechanics*. New-York City, United States, juill. 2018.
- [50] A. PEREIRA, N. VALADE et al. *Folding instabilities in non-Newtonian viscous sheets : shear thinning and shear thickening effects*. en. Rapp. tech. arXiv :2102.07161. Fév. 2021.
- [51] B. D. RABIDEAU, P. MOUCHERONT, F. BERTRAND, S. RODTS, Y. MÉLINGE et al. « Internal Flow Characteristics of a Plastic Kaolin Suspension During Extrusion ». en. In : *Journal of the American Ceramic Society* 95.2 (fév. 2012). Sous la dir. de G. FRANKS, p. 494-501.
- [52] B. D. RABIDEAU, P. MOUCHERONT, F. BERTRAND, S. RODTS, N. ROUSSEL et al. « The extrusion of a model yield stress fluid imaged by MRI velocimetry ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 165.7-8 (avr. 2010), p. 394-408.

- [53] Y. RAHMANI et al. « Coiling of yield stress fluids ». en. In : *Physical Review E* 83.5 (mai 2011), p. 056327.
- [54] N. M. RIBE. « Coiling of viscous jets ». en. In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 460.2051 (nov. 2004), p. 3223-3239.
- [55] N. M. RIBE, M. HABIBI et D. BONN. « Stability of liquid rope coiling ». en. In : *Physics of Fluids* 18.8 (août 2006), p. 084102.
- [56] N. M. RIBE, M. HABIBI et D. BONN. « Liquid Rope Coiling ». en. In : *Annual Review of Fluid Mechanics* (2011), p. 21.
- [57] N. ROUSSEL, H. BESSAIES-BEY et al. « Recent advances on yield stress and elasticity of fresh cement-based materials ». en. In : *Cement and Concrete Research* 124 (oct. 2019), p. 105798.
- [58] N. ROUSSEL, G. OVARLEZ et al. « The origins of thixotropy of fresh cement pastes ». en. In : *Cement and Concrete Research* 42.1 (jan. 2012), p. 148-157.
- [59] N. ROUSSEL. « Rheological requirements for printable concretes ». en. In : *Cement and Concrete Research* 112 (oct. 2018), p. 76-85.
- [60] N. ROUSSEL, B. RICHARD et al. « Assessing the fresh properties of printable cement-based materials : High potential tests for quality control ». en. In : *Cement and Concrete Research* 158 (août 2022), p. 106836.
- [61] G. I. TAYLOR. « Instability of jets, threads, and sheets of viscous fluid ». en. In : *Applied Mechanics*. Sous la dir. de M. HETÉNYI et W. G. VINCENTI. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1969, p. 382-388.
- [62] B. TCHAVDAROV, A. L. YARIN et S. RADEV. « Buckling of thin liquid jets ». en. In : *Journal of Fluid Mechanics* 253.-1 (août 1993), p. 593.
- [63] B. THENG. « The Clay Minerals ». en. In : *Developments in Clay Science*. T. 4. Elsevier, 2012, p. 3-45.
- [64] J. TOURTELOT et al. « Yield stress measurement for earth-based building materials : the weighted plunger test ». en. In : *Materials and Structures* 54.1 (fév. 2021), p. 6.
- [65] R. VALETTE et al. « Viscoplastic dam-breaks ». en. In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 287 (jan. 2021), p. 104447.
- [66] S. VARCHANIS et al. « Transition between solid and liquid state of yield-stress fluids under purely extensional deformations ». en. In : *PNAS* (2020), p. 7.

- [67] R. WOLFS, T. SALET et N. ROUSSEL. « Filament geometry control in extrusion-based additive manufacturing of concrete : The good, the bad and the ugly ». en. In : *Cement and Concrete Research* 150 (déc. 2021), p. 106615.
- [68] A. L. YARIN et al. « Elongational behavior of gelled propellant simulants ». en. In : *Journal of Rheology* 48.1 (jan. 2004), p. 101-116.
- [69] H. YUK et X. ZHAO. « A New 3D Printing Strategy by Harnessing Deformation, Instability, and Fracture of Viscoelastic Inks ». en. In : *Advanced Materials* 30.6 (fév. 2018), p. 1704028.
- [70] X. ZHANG et al. « Yielding and Flow of Soft-Jammed Systems in Elongation ». en. In : *Physical Review Letters* 120.4 (jan. 2018), p. 048001.

## Annexe A

# Calibration de l'imprimante Wasp 3D

On cherche ici à quantifier l'écart entre l'instruction donnée à l'imprimante et la valeur réelle de plusieurs paramètres : la concentration en kaolin du filament extrudé, la vitesse de déplacement de la buse d'impression et la vitesse de sortie moyenne du filament.

### Concentration en kaolin du filament extrudé

La pâte de kaolin a une concentration maîtrisée et connue lorsqu'elle est insérée dans le cylindre récipient. Elle suit ensuite un parcours qui lui fait d'abord subir une réduction de section, puis elle passe dans un mètre de tuyau, et elle est cisailée par une vis sans fin avant d'être extrudée. On souhaite vérifier si ce parcours n'entraîne pas une évolution de la concentration en kaolin. On fait un essai où la buse, immobile, extrude un filament à une vitesse de sortie constante. Quelques grammes de filament sont récupérés dans un coupelle, puis la coupelle est pesée. Elle est ensuite mise dans un four à 60°C pendant 24h, de manière à sécher le filament. On note  $m_c$  la masse initiale de la coupelle,  $m_{c+ki}$  la masse de la coupelle avec kaolin juste après l'extrusion, et  $m_{c+kf}$  la masse de la coupelle avec kaolin après 24h. Alors, la concentration volumique en kaolin du filament extrudé est obtenue par la relation

$$\phi_{extrudé} = \frac{m_{c+kf} - m_c}{(m_{c+kf} - m_c) + d_k(m_{c+ki} - m_{c+kf})} \quad (\text{A.1})$$

Au cours d'une journée d'impression typique, on a fait cet essai d'extrusion à intervalles réguliers (figure A.1). Nous n'observons pas de variation de la concentration en kaolin au cours des 2 premières heures. En revanche, après sur les résultats après deux heures

d'expériences, la concentration en sortie devient à la fois plus grande en moyenne (d'1%), et aussi plus fluctuante. 1% de variation pour une concentration à 27% implique une variation importante du seuil, d'environ 10%. On a donc choisi de limiter les essais sur cette imprimante à moins de deux heures pour limiter cette augmentation de la concentration à moins de 1%.

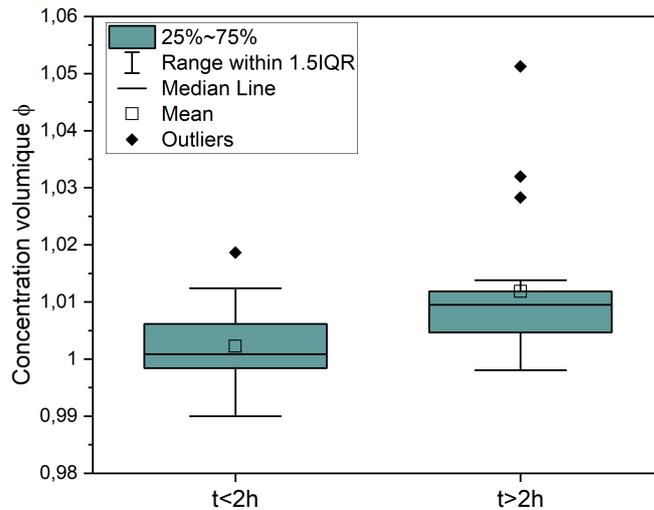


FIGURE A.1 – Evolution de la concentration en kaolin avec le temps d'impression

### Vitesse de déplacement de la buse d'impression

Le code lu par l'imprimante, prenons par exemple un code pour l'impression d'une ligne, reçoit une instruction de distance à parcourir (nouvelles coordonnées X et Y), et une instruction de temps à mettre pour parcourir cette distance, à travers le rapport entre la longueur de filament à extruder E et la vitesse de sortie F. Dans l'exemple suivant, on attend que le temps de parcours de la ligne soit de 60/600 min, soit 6 secondes :

```
G0 F2500 X100.0 Y0 Z2.4;Placement à la position de démarrage
G1 F600.0 X-100.0 Y0 E60 ;Extrusion de la ligne
```

Et c'est le temps qui est effectivement mesuré. Mais nous avons fait plusieurs essais d'impression de lignes en faisant varier l'instruction de vitesse de sortie F, et pour des

---

vitesses de sortie  $F$  faibles, le temps réel mis pour parcourir une ligne est systématiquement inférieur au temps de l'instruction (figure A.2).

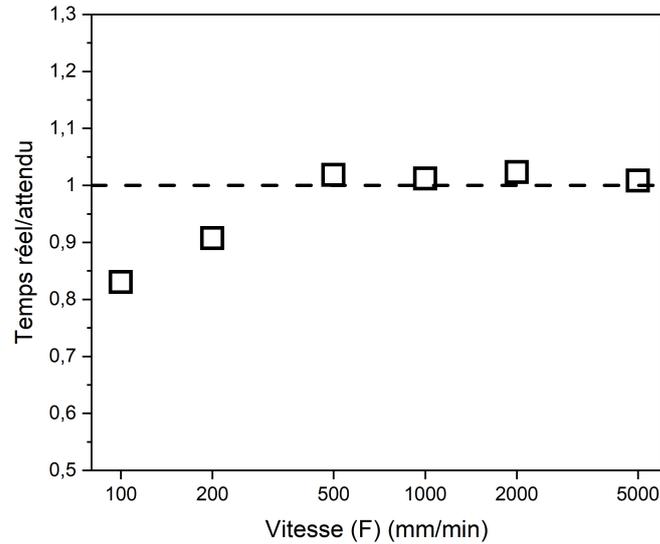


FIGURE A.2 – Temps de parcours de la buse réel/demandé à différentes vitesses  $F$  (mm/min)

On a en plus observé très clairement une différence de vitesses sur une même ligne. Au début et à la fin de la ligne, la buse se déplace plus lentement qu'au milieu. Cet effet est très prononcé si  $F > 1000$  mm/min, et devient léger (à l'œil) pour  $F$  inférieur.

Les vitesses de déplacement varient donc entre l'instruction et la réalité, mais elles ont l'avantage d'être liées à une « interprétation machine », qui fait qu'elles restent les mêmes d'un essai à un autre. Ainsi, l'essai de calibration représenté sur la figure A.2 permet d'obtenir un coefficient correcteur qui relie la vitesse de déplacement réelle à l'instruction par  $V_{trans\ réelle} = V_{trans\ instruc} * coef$ . Nous avons choisi de faire les essais à une instruction de vitesse d'extrusion  $F = 500\text{mm.min}^{-1}$ , car c'est la vitesse la plus rapide parmi celles qui permettent un dépôt à vitesse à peu près constante. Le coefficient à appliquer à cette vitesse vaut 1.02. En procédant ainsi, la vitesse de déplacement réelle est prédictible avec une erreur de moins de 1%, qui est simplement due à l'imprécision du chronomètre utilisé pour la calibration.

### Vitesse de sortie moyenne du filament

---

L'instruction F permet de fixer la vitesse de sortie du filament. Elle vient piloter la vis sans fin, et lui impose la bonne vitesse de rotation. Pour vérifier si l'imprimante a extrudé à la vitesse de sortie demandée, on peut faire le même essai que pour vérifier la concentration en sortie. La buse est immobile, et on lance un code qui demande l'extrusion d'une certaine quantité de matière à une certaine vitesse. Dans l'exemple suivant, on demande l'extrusion de 60mm de filament à 600mm/min. La vitesse réelle est le rapport entre le temps réel d'extrusion, que l'on chronomètre, et la longueur réelle extrudée, que l'on obtient par la masse de filament extrudé.

Extrusion sans déplacement :  
G0 F2500 X0 Y0 Z40 ;Placement à la position de démarrage  
G1 F600.0 E60 ;Extrusion

La pâte de kaolin arrive au contact de la vis sans fin avec une certaine vitesse en sortie du tuyau, qui a été imposée par la poussée du piston. Ce piston est contrôlé à l'air comprimé. Nous avons remarqué qu'en faisant varier la pression de l'air sur le piston, la vitesse de sortie du filament varie. Pour une concentration  $\phi = 36\%$ , nous montrons sur la figure A.3 le rapport entre la longueur extrudée et la longueur demandée en fonction de la vitesse de sortie F demandée, pour plusieurs pressions. Il faut que le débit en entrée de la vis sans fin soit au moins égal au débit demandé en sortie. S'il est inférieur, la matière n'arrive pas assez vite à la vis sans fin, et le débit demandé ne peut être satisfait. C'est la raison pour laquelle la longueur extrudée réelle à 1 bar pour  $\phi = 36\%$  devient inférieure à 1 à partir de F500. On voudrait alors augmenter la pression pour pouvoir imprimer plus vite que F500, mais lorsqu'on augmente la pression du piston, on augmente le débit en entrée de la vis sans fin. Et on constate que le débit en sortie est supérieur à ce qui était demandé (courbes à 1.5 et 2bars). La vis sans fin n'a pas été capable de contenir le débit d'entrée plus important, et ce d'autant plus que la pression était grande. En pratique, au début de chaque session d'impression, nous avons fixé la pression, fait un essai d'extrusion pour trouver le rapport entre la longueur de matière extrudée et celle attendue, puis nous avons corrigé les données de vitesses d'extrusion dans nos expériences d'impression a posteriori.

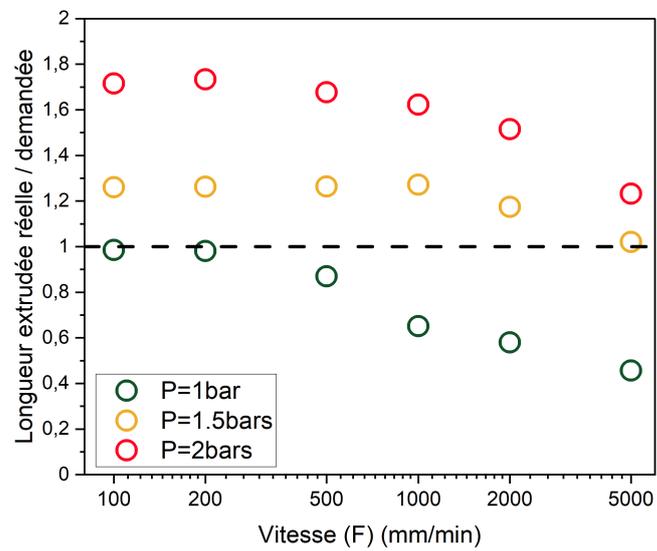


FIGURE A.3 – Evolution du rapport longueur extrudée réelle / demandée en fonction de la vitesse de sortie demandée  $F$  (mm/min), à plusieurs pressions, pour  $\phi = 36\%$ .

## Annexe B

# Codes pour l'analyse des écoulements d'extrusion

Les codes utilisés pour le traitement et l'analyse des extrusions seront déposés sur GitHub prochainement, de manière à être consultables librement.

### **Threshold**

Pour passer d'une image en niveaux de gris (niveaux de 0 à 255) à une image en noir et blanc (0 ou 255), il faut choisir le niveau de gris limite tel que tous les pixels plus foncés deviendront noirs, et tous les pixels plus clairs deviendront blancs. Dans notre étude, on veut pouvoir séparer la goutte extrudée, qu'on souhaite toute en blanc, du reste de l'image, qu'on souhaite tout en noir, pour pouvoir analyser l'évolution des déformations de cette goutte. Il faut donc choisir le bon threshold pour que le profil de la goutte récupéré en noir et blanc soit fidèle à la réalité. La première chose à faire est d'avoir une image nette en niveaux de gris. Pour les fluides à seuil clairs, nous avons donc mis un fond noir derrière la buse, et éclairé de manière à ne pas avoir d'ombre sur le filament. Pour les fluides à seuil foncés ou transparents (carbopol, ketchup et certains ciments), nous avons plutôt utilisé un fond lumineux, qui permet d'avoir un contour de la goutte très net et bien contrasté. Dans ce deuxième cas, les couleurs de l'image sont inversées avant de faire le threshold. Finalement, pour choisir le threshold, on a généralement vérifié visuellement que les contours de la goutte en noir et blanc se superposaient bien sur la goutte en niveaux de gris. Pour valider la bonne calibration, on a pu peser la goutte extrudée et comparer la masse pesée à une masse par l'imagerie (volume \* densité).

### **Repérage de la cassure**

On cherche à identifier le moment de la cassure d'une goutte dans un film. Quand la goutte est en cours d'extrusion, elle est en un seul bloc, alors qu'elle se sépare en deux blocs juste après la cassure. On utilise ce principe pour déterminer un critère de cassure. Quand on lit une vidéo, si l'image en noir et blanc contient un seul bloc blanc (goutte), on passe à la suivante. Si l'image contient deux blocs blancs, on vérifie que l'image d'avant n'en contenait qu'un seul (goutte encore accrochée) et que l'image d'après en contient toujours deux (chute de la goutte encore dans le champ). Si tout est vérifié, on note l'image comme étant le moment de rupture de la goutte. On peut alors sélectionner les images précédentes pour étudier les déformations au cours de la rupture.



FIGURE B.1 – 3 images à la suite pour repérer la cassure. La première ne contient qu'un bloc blanc. La deuxième et la troisième en contiennent deux

### Lissage de gouttes

Grâce au threshold, on a relevé un profil de goutte. Il fait de l'ordre du millier de pixels dans l'axe  $z$  (gouttes de plusieurs centimètres de long), et varie très légèrement sur l'axe  $r$  (moins de la centaine de pixels aux déformations faibles). On obtient donc un profil saccadé, avec des plateaux et des marches. Pour la suite de l'analyse des profil (mesure de taux de déformation à partir des profils), il faut connaître la pente du profil. Pour faire cela, on lisse ce profil, de manière à ce que l'évolution brutale de la pente au niveau d'une marche soit lissée sur plusieurs pixels. Le lissage tendra donc à refournir la pente réelle de la goutte. Pour cela, j'ai utilisé une méthode simple de moyenne glissante. Elle consiste à parcourir l'ensemble de la longueur du profil, et, pour chaque point, à prendre le rayon moyen sur les 10 points avant et les 10 points après. Alors que la précision des points du profil était limitée par la taille d'un pixel avant lissage, elle est largement améliorée (jusqu'au nombre de points dans le moyennage, soit 20 fois) avec le lissage. L'intérêt du lissage est donc double : augmenter la précision du profil et permettre sa dérivabilité.

### Choix des pas entre les données

Le choix des pas temporel et positionnel a un impact important sur la qualité des données. Selon le pas, la valeur et l'erreur peuvent être très différents. Les points  $(R,Z)$

---

du profil sont distants de 1 pixel en  $Z$ , et de beaucoup moins en  $R$ . Le profil brut a été lissé, ce qui permet de dépasser la précision de 1 pixel en  $R$ . Le problème dans le cas non lissé est que lorsque  $Z$  augmente,  $R$  ne varie pas forcément, et on mesure alors une pente nulle alors qu'elle est seulement faible en réalité. Même en lissant, nous avons constaté que les valeurs des contraintes et des déformations étaient très bruitées si on prenait le pas minimum de 2 points pour leur calcul. Faire des calculs tous les 10 points permet de diminuer le bruit des résultats. Cela ajoute certainement une légère erreur sur le calcul de la contrainte et du taux de déformation, mais qui est bien plus faible que celle qu'il y aurait sans ce pas.

Dans cette étude, le temps minimum entre 2 images est de 1/60ème de secondes. Sur ce temps-là, le rayon du filament évolue très peu sur la majorité de son extrusion, mais évolue de manière importante et visible (avec la superposition des profils par exemple) pendant les derniers temps avant la rupture. Nous avons choisi de prendre un pas temporel qui évolue avec l'avancée de l'extrusion. Le temps est repéré par rapport au temps de rupture. On prend un pas de 1/60s pour les 10 profils avant la rupture, puis 5 profils avec un pas de 1/20s, 10 profils avec un pas de 1/6s, et enfin 10 derniers profils pour lesquels on calcule un pas tel qu'ils sont bien répartis en temps entre le démarrage de l'extrusion et le dernier profil des pas de 1/6s. Cela donne les groupes de profils montrés sur la figure B.2 utilisés pour l'analyse du comportement en élongation. En fait, ces pas permettent assez bien de montrer des distances en  $R$  entre les profils qui sont de l'ordre de la distance en  $Z$  entre les points d'un profil. Cela permet que tous les composantes du calcul des contraintes et des taux de déformation aient un poids similaire. On note que la vitesse de sortie varie, et donc que le temps total d'une extrusion aussi. Mais le phénomène de réduction de la section (la partie d'écoulement) est relativement indépendant de cette vitesse. Ainsi, les pas de temps choisis permettent de bien capturer le phénomène d'écoulement, et fonctionne aussi dans la partie solide qui est moins sensible aux évolutions temporelles.

### **Méthode de dérivation**

Nous avons choisi une méthode de dérivation des données discrètes à partir de 2 points. En utilisant 3 points, l'erreur sur la valeur de la dérivée est théoriquement plus faible qu'avec 2 points. Mais avec nos données, prendre 3 points amène des résultats plus bruités pour les valeurs de  $\dot{\epsilon} > 1s^{-1}$  qu'avec 2, probablement parce que les évolutions de vitesse aux derniers temps avant la rupture deviennent trop importantes en regardant 3 profils plutôt que 2.

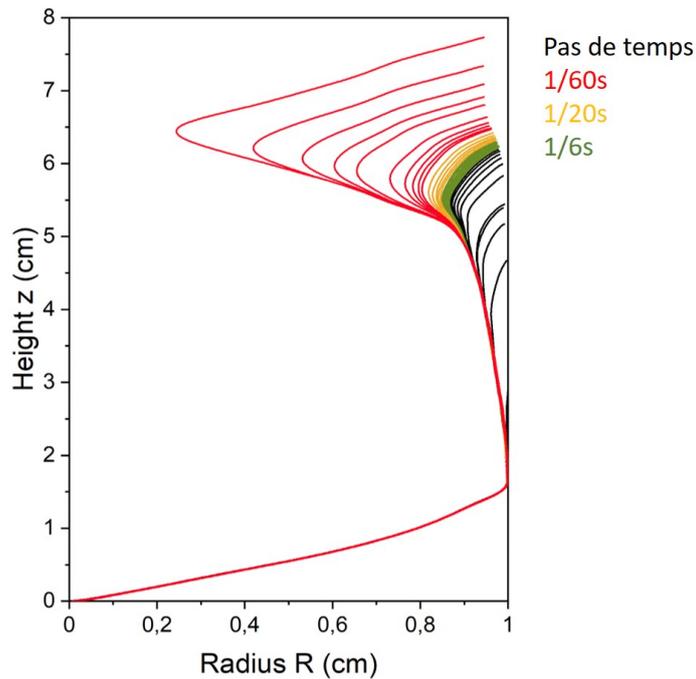


FIGURE B.2 – Profils utilisés pour l’analyse des lois de comportement du kaolin. Les pas de temps entre chaque profil sont indiqués par leur couleur

### Code de récupération de la masse des gouttes

J’ai utilisé la bibliothèque Pandas, disponible en accès libre sur Python. Elle permet, à la manière d’un tableur comme Excel, de manipuler et analyser des données. En pratique, dans une expérience, une série de gouttes d’un matériau à vitesse de sortie et diamètre donnés fournit un fichier texte. Un premier code Pandas permet de construire un tableau où sont indiqués le temps et la masse donnés par la balance. Les colonnes matériau, vitesse de sortie et diamètre de la buse sont ajoutées. Un deuxième code permet de passer des données brutes de masse de la balance (plusieurs milliers de points) à la liste des masses des gouttes (quelques dizaines de points). Pour repérer une goutte à partir des données de la balance, il faut distinguer les moments où la masse augmente subitement (impact de la goutte sur la balance) des périodes où la masse n’évolue pas (extrusion de la prochaine goutte). Pour cela, on relève la valeur de masse au premier temps, puis on parcourt l’ensemble des masses relevées en démarrant par les premiers temps. Si, pour un point, la masse est différente de la première masse, c’est qu’une goutte est tombée. On regarde alors l’écart-type entre les masses des points environnants. S’il

---

est important, c'est que la goutte est en train de s'écraser, la masse n'est pas encore stabilisée. Si l'écart-type est faible, la masse ne varie plus, et on relève la différence entre la première masse et cette nouvelle masse. C'est la masse de la goutte qui est tombée. On procède ainsi de suite avec comme nouvelle référence de masse la dernière masse relevée. J'ai fait plusieurs relevés manuellement pour valider que je trouve bien les mêmes séries de masses de gouttes qu'avec le code. Fréquemment, la première goutte et la dernière goutte peuvent être assez éloignées du reste de la série, donc ils sont écartés. L'intérêt de Pandas est qu'on peut faire des opérations et de l'analyse de manière plus automatisée que sur un tableur classique. Par exemple, il devient très simple de récupérer la moyenne et l'erreur standard de toutes les gouttes extrudées à une vitesse donnée, en ajoutant des conditions de tri, comme supprimer celles qui ont une masse de moins de 1g. Dans la suite, on montrera essentiellement la moyenne et l'erreur sur les listes de masses ainsi récupérées.

## Annexe C

# Flambement

Le flambement de solides élastiques et de fluides visqueux est décrit en comparant les énergies dissipées d'un filament qui se déforme soit par flambement soit par écrasement homogène (voir chapitre 1). On cherche à déterminer un critère de flambement sur le même principe mais bien adapté pour décrire le flambement d'une suspension de kaolin, dont le comportement est bien décrit par un modèle de type Herschel-Bulkley.

### C.1 Traitement théorique

On propose ici de dériver un critère de flambement en cherchant à savoir quelle conformation est la plus favorable énergétiquement entre l'écrasement homogène et le flambement. Pour ça, on considère qu'un filament cylindrique, qui a initialement une hauteur  $H$  et un diamètre  $D_0$ , est écrasé d'une hauteur  $\Delta H$ . Ce filament va pouvoir s'écraser en se déformant soit de manière homogène, soit en flambant, comme illustré sur la figure C.1. On suppose que ce filament a un comportement de fluide à seuil de type Herschel-Bulkley sans déformations dans le domaine solide. Alors, il va se déformer en dissipant son énergie de manière plastique et visqueuse (VALETTE et al. 2021). On considère que le filament est comprimé suffisamment lentement pour que la dissipation visqueuse, qui est fonction croissante du taux de déformation, soit négligeable devant la dissipation plastique. On peut alors écrire la quantité d'énergie plastique dissipée de manière locale.

$$\frac{dP}{d\Omega} = \text{tr}(\Sigma D) = \text{tr}\left(\frac{\tau_c D}{\sqrt{D_{II}}} * D\right) = 2\tau_c \sqrt{D_{II}} \quad (\text{C.1})$$

Comme on peut le voir sur la figure C.1, les configurations d'écrasement et de flambement peuvent se découper en une addition de couches identiques. On peut donc sommer

les puissances dissipées dans chaque couche (puissances locales) pour trouver la puissance dissipée sur tout le filament (puissance totale).

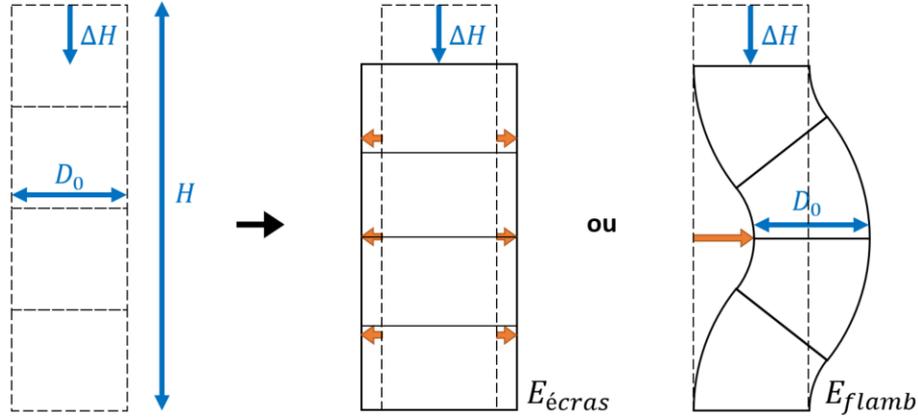


FIGURE C.1 – À partir d'un filament initial de hauteur  $H$  et diamètre  $D_0$  (à gauche), représentation modèle des modes d'écrasement homogène (au centre) et de flambement (à droite)

### Puissance dissipée par écrasement homogène

On commence par décrire le cas plus simple de l'écrasement homogène du cylindre. Le problème est symétrique par rapport à  $\theta$ , donc sa description se fait dans le plan  $rOz$ . La coupe du cylindre dans ce plan est un rectangle, dont la hauteur et la largeur avant écrasement sont nommés  $H_0$  et  $R_0$ , et, après,  $H$  et  $R$  (voir figure C.2). La conservation du volume du cylindre implique

$$R_0^2 H_0 = R^2 H \quad (\text{C.2})$$

On cherche à écrire le tenseur des taux de déformation  $\bar{D}$  pour calculer la puissance dissipée de cette coupe du filament. Par définition,  $\bar{D} = \frac{1}{2}(\bar{\nabla}v + \bar{\nabla}v^T)$ , et  $v = \frac{du}{dt}$ .  $u_z$  doit varier linéairement avec  $z$  et ne doit pas dépendre de  $r$ . L'écriture suivante remplit ces conditions et satisfait les conditions aux limites en  $z = 0$  et  $z = H_0$

$$u_z = \frac{z}{H_0}(H_0 - H) \quad (\text{C.3})$$

Alors  $v_z = -\frac{z}{H_0}\dot{H}$ , et  $\frac{\partial v_z}{\partial z} = -\frac{\dot{H}}{H_0}$ . Il est généralement considéré que les déformations sont principalement élongationnelles dans d'une compression où la hauteur est supérieure au diamètre. C'est ce qu'on va supposer, et on écrit que la forme du tenseur des déformations est

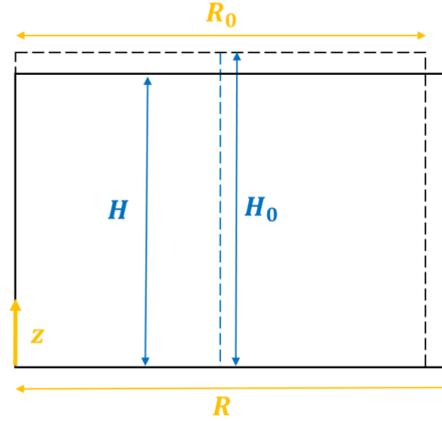


FIGURE C.2 – Une coupe du filament de hauteur  $H_0$  et de rayon  $R_0$  (en pointillés) est écrasée de manière homogène jusqu'à une hauteur  $H$  et un rayon  $R$  (en traits pleins)

$$D = \dot{\epsilon} * \begin{bmatrix} -\frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{C.4})$$

$$\text{avec } \dot{\epsilon} = \frac{\partial v_z}{\partial z} = -\frac{\dot{H}}{H_0} \quad (\text{C.5})$$

Il est alors possible d'écrire la puissance dissipée par l'écrasement en calculant la valeur du second invariant du tenseur des déformations  $D_{II}$  puis en intégrant l'équation C.7 sur tout le volume du filament

$$D_{II} = \frac{1}{2} \text{tr}(D^2) = \frac{3}{4} * \left(\frac{\dot{H}}{H_0}\right)^2 \quad (\text{C.6})$$

$$\frac{dP}{d\Omega} = 2\tau_c \sqrt{D_{II}} = \sqrt{3}\tau_c * \frac{\dot{H}}{H_0} \quad (\text{C.7})$$

$$P_{ecras} = -\sqrt{3}\tau_c \frac{\dot{H}}{H_0} * \iiint_{r=0, \theta=0, z=0}^{r=R_0, \theta=2\pi, z=H_0} r dr d\theta dz = -\pi\sqrt{3}\tau_c \dot{H} R_0^2 \quad (\text{C.8})$$

### Puissance dissipée par flambement

La puissance dissipée par flambement se calcule de manière analogue. Le volume qui se répète pour le flambement est un morceau de tore qui a le même diamètre que le cylindre initial et le même volume. Comme il n'y a pas de symétrie de rotation pour

ce problème, on choisit le repère cartésien  $(x, y, z)$ , et on considère une coupe dans le plan  $(xOz)$ , qui lui est un plan de symétrie. La coupe du tore est caractérisée par un angle  $\theta$  et un rayon de courbure  $R_t$  (voir figure C.3). Le rectangle (coupe du cylindre) initial a une hauteur  $H_0$  et une largeur  $2 * R_0$ . On peut écrire de nouveau la condition de conservation du volume

$$\text{Forme initiale cylindrique } V_c = \pi R_0^2 H_0 \quad (C.9)$$

$$\text{Forme flambée torique } V_t = \int_0^\theta R_t d\theta \int_{0,0}^{R_0,2\pi} r dr d\phi = \pi R_0^2 * R_t \theta \quad (C.10)$$

$$\text{donc } R_t \theta = H_0 \quad (C.11)$$

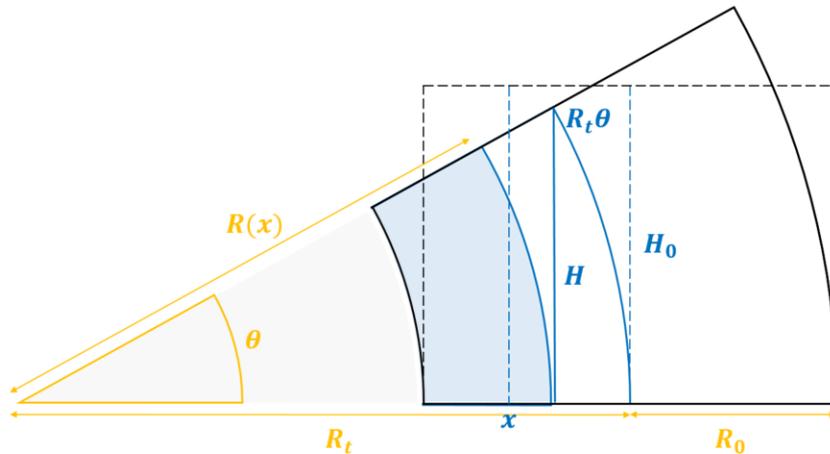


FIGURE C.3 – Schéma pour le flambement

Pour que ce volume de tore soit un volume représentatif, il faut que la propriété de conservation du volume soit conservée lorsqu'on considère un volume avec un rayon plus petit. Dans le cas de l'écrasement, le fait que la déformation est indépendante de  $r$  implique la conservation du volume quel que soit le rayon initial. Dans le cas du tore, il faut que l'ensemble des points en  $x$  (repérés par la ligne bleue en pointillés la plus à gauche) se déplacent de manière à former un arc d'angle  $\theta$  et de longueur  $R\theta$  (arc bleu plein le plus à gauche). Ainsi, la surface à gauche de  $x$  sur la figure C.3 est la même que la surface bleutée, et ce pour tout  $x$  entre  $-R_0$  et  $R_0$ . Cela rajoute une condition

$$\text{Surface initiale rectangulaire } S_i = H_0(R_0 + x) \quad (\text{C.12})$$

$$\text{Surface flambée } S_f = \frac{\theta}{2}(R(x)^2 - (\frac{H_0}{\theta} - R_0)^2) \quad (\text{C.13})$$

$$\text{donc } R(x) = \frac{H_0}{\theta}(1 + \frac{2x\theta}{H_0} + (\frac{R_0\theta}{H_0})^2)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{C.14})$$

On peut alors écrire les déformations en tout point du tore grâce à cette condition supplémentaire. La projection sur  $Ox$  et  $Oz$  d'un point sur un arc implique que le déplacement contient un terme en cosinus et un en sinus, ce qui rend l'expression du gradient très lourde à cause des différentes étapes de dérivation. On donne donc une expression approchée des déplacements en faisant l'hypothèse que  $\theta$  est faible. On peut constater sur la figure que la forme du tore est quasiment identique en utilisant l'expression exacte et approximée.

$$u_x = \frac{H_0}{\theta}(1 + \frac{2x\theta}{H_0} + (\frac{R_0\theta}{H_0})^2)^{\frac{1}{2}} * \cos(\frac{z\theta}{H_0} - (\frac{H_0}{\theta} + x)) \quad (\text{C.15})$$

$$\approx \frac{R_0^2 - x^2 - z^2}{2H_0}\theta + \frac{x^3 - x(R_0^2 + z^2)}{2H_0^2}\theta^2 \quad (\text{C.16})$$

$$u_z = \frac{H_0}{\theta}(1 + \frac{2x\theta}{H_0} + (\frac{R_0\theta}{H_0})^2)^{\frac{1}{2}} * \sin(\frac{z\theta}{H_0} - z) \quad (\text{C.17})$$

$$\approx \frac{xz}{H_0}\theta + \frac{3z(R_0^2 - x^2) - z^3}{6H_0^2}\theta^2 \quad (\text{C.18})$$

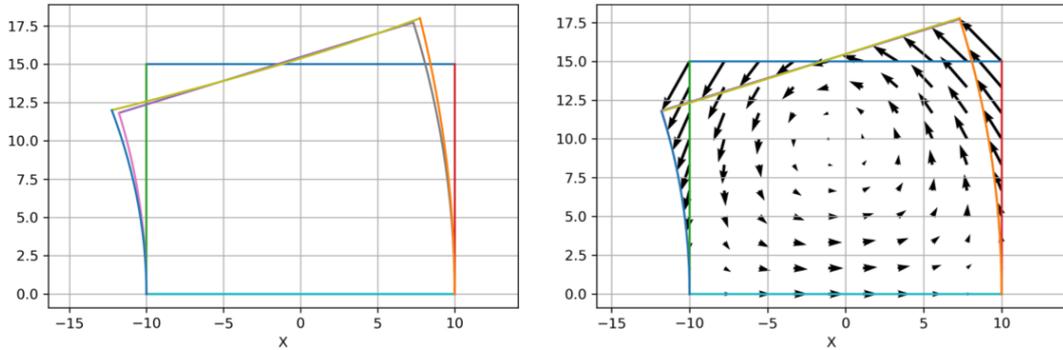


FIGURE C.4 – À gauche, contours au second ordre (arcs bleu et orange) et au premier ordre (arcs rose et gris) du filament courbé. Le contour exact est confondu avec l'approximation au second ordre. À droite, champ de déplacement du filament initial cylindrique vers le filament courbé

Le tenseur des taux de déformation 3D doit avoir une trace nulle pour assurer la

conservation du volume. Il est écrit à l'ordre 1 (C.19) et à l'ordre 2 (C.21), et on note  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  les termes en  $yy$  des tenseurs à l'ordre 1 et 2 respectivement.

À l'ordre 1

$$D = \frac{\dot{\theta}}{H_0} * \begin{bmatrix} -x & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_1 & 0 \\ 0 & 0 & x \end{bmatrix} \quad (\text{C.19})$$

$$\text{avec } \alpha_1 = 0 \quad (\text{C.20})$$

À l'ordre 2

$$D = \frac{\dot{\theta}}{H_0} * \begin{bmatrix} -x - \frac{R_0^2 - 3x^2 + z^2}{H_0} \theta & 0 & -\frac{4xz}{H_0} \theta \\ 0 & \alpha_2 & 0 \\ -\frac{4xz}{H_0} \theta & 0 & x + \frac{R_0^2 - x^2 - z^2}{H_0} \theta \end{bmatrix} \quad (\text{C.21})$$

$$\text{avec } tr(D) = 0 \Leftrightarrow \alpha_2 = \frac{2(z^2 - x^2)}{H_0} \theta \quad (\text{C.22})$$

Alors, il est possible de calculer la puissance dissipée dans le cas de déformations par flambement, d'abord de manière volumique, puis sur l'ensemble du volume du filament.

$$D_{II} = \frac{1}{2} tr(D^2) = \left(\frac{\dot{\theta}}{H_0}\right)^2 * \left(x^2 + \frac{2x}{H_0} * (R_0^2 - 2x^2) * \theta + O(\theta^2)\right) \quad (\text{C.23})$$

$$\frac{dP}{d\Omega} = 2\tau_c \sqrt{D_{II}} \approx 2\tau_c * \frac{\dot{\theta}}{H_0} \sqrt{x^2 + \frac{2x}{H_0} * (R_0^2 - 2x^2)} \quad (\text{C.24})$$

Pour la section centrale,

$$\frac{dP}{dy} = 2\tau_c \frac{\dot{\theta}}{H_0} * \iint_{x=-R_0, z=0}^{x=R_0, z=H_0} \sqrt{x^2 + \frac{2x}{H_0} * (R_0^2 - 2x^2)} dx dz = 2\tau_c \dot{\theta} R_0^2 \quad (\text{C.25})$$

Et pour le volume total,

$$P_{flamb} = 2\tau_c \dot{\theta} * \int_{y=-R_0}^{y=R_0} (R_0^2 - y^2) dy = \frac{8}{3} \tau_c \dot{\theta} R_0^3 \quad (\text{C.26})$$

### Critère de flambement

Les équations C.8 et C.26 donnent les expressions des puissances plastiques dissipées par écrasement homogène et par flambement. La hauteur d'écrasement  $H$  est liée à l'angle  $\theta$  par la relation

$$H = H_0 \frac{\sin(\theta)}{\theta} \approx H_0 \left(1 - \frac{\theta^2}{6}\right) \quad (\text{C.27})$$

donc

$$\dot{H} \approx \frac{H_0}{3} \dot{\theta} \theta \quad (\text{C.28})$$

L'équation pour l'écrasement C.8 peut alors se réécrire

$$P_{ecras} = -\pi\sqrt{3}\tau_c \dot{H} R_0^2 = \frac{\pi}{\sqrt{3}}\tau_c H_0 R_0^2 \dot{\theta} \sqrt{6\left(1 - \frac{H}{H_0}\right)} \quad (\text{C.29})$$

Le flambement démarre si l'énergie dissipée par flambement est inférieure à l'énergie dissipée par écrasement, c'est-à-dire si

$$P_{ecras} > P_{flamb} \quad (\text{C.30})$$

$$\frac{\pi}{\sqrt{3}}\tau_c H_0 R_0^2 \dot{\theta} \sqrt{6\left(1 - \frac{H}{H_0}\right)} > \frac{8}{3}\tau_c \dot{\theta} R_0^3 \quad (\text{C.31})$$

$$\frac{\Delta H}{H} > \frac{8}{9\pi^2} * \left(\frac{R_0}{H_0}\right)^2 \quad (\text{C.32})$$

avec  $\Delta H = H_0 - H$ . Ce critère a la même forme que les critères élastiques et visqueux (1.2.3)

## C.2 Résultats expérimentaux

Nous montrons ici des premiers résultats d'expérience pour tester le critère de flambement plastique obtenu ci-dessus. L'expérience se fait sur la machine Instron utilisée comme extrudeuse simple. La surface de dépôt et la buse sont à une distance assez proche pour permettre un dépôt sans cassure du filament. Le filament est extrudé, en faisant attention à ce que sa base soit bien plane, et la mesure démarre lorsque sa base touche la surface de dépôt. L'extrusion continue, et est filmée à 30 images par secondes avec une résolution de 1920\*1080 pixels. Nous avons utilisé des buses cylindriques avec des diamètres de 0.5, 1 et 2cm, et nous avons fait varier la hauteur entre  $H_{min} = D_0$  et  $H_{max} = H_c$ , hauteur expérimentale à partir de laquelle le filament casse systématiquement. La vidéo est traitée par un code Python pour en récupérer à chaque temps l'axe central du filament et le rayon de chaque section de l'axe (ce qui correspond à  $S$  et  $a(S)$ )

## C.2. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

sur la figure 1.5) à l'aide d'une procédure maison basée sur le traitement d'images utilisé pour l'analyse du chapitre 3.2. La figure C.5 montre la compression de filaments pour  $D_0 = 1\text{cm}$  et  $H = 1, 2, 3$  et  $4\text{cm}$ . Les axes centraux et les rayons aux différents temps de l'expérience sont rassemblés sur la partie droite de la figure.

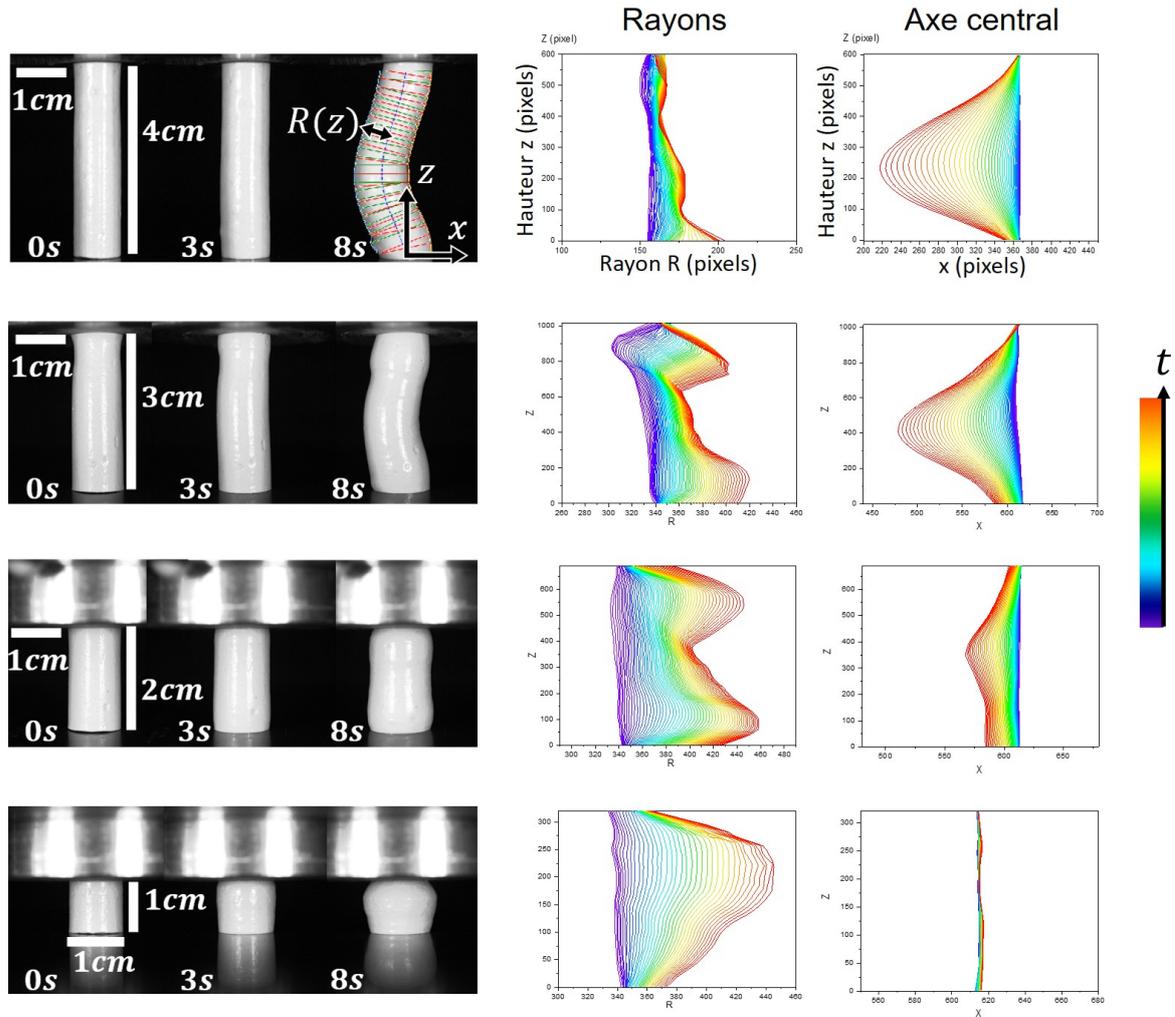


FIGURE C.5 – Expériences de compression (par extrusion) d'un filament de kaolin à  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 1\text{cm}$  et  $V_{\text{sortie}} = 1\text{mm.s}^{-1}$ , pour des hauteurs de filament de 4, 3, 2 et 1cm (de haut en bas). Pour chaque hauteur, on montre à gauche 3 photographies du filament à 0, 3 et 8s d'extrusion, et à droite, on rassemble dans un premier graphe les rayons du filament en fonction de  $z$  à chaque temps, et dans un second graphe l'axe central à chaque temps. Le temps évolue des courbes violettes vers les courbes rouges. Sur le filament à  $H = 4\text{cm}$  à 8s, on visualise les rayons et l'axe central, et on montre le repère  $xOz$  et un rayon  $R(z)$ .

On regarde d’abord si le flambement peut correspondre à des modèles donnés dans le chapitre 1. Les expériences d’oscillations ont donné un module élastique  $G' = 2.5 \cdot 10^5 Pa$  tant que  $\varepsilon < 0.1\%$  pour le kaolin à  $\phi = 27\%$  (section 2.3). Le flambement devrait démarrer si la contrainte de compression vaut  $\sigma_{comp} \approx G' * \frac{D_0^2}{H^2}$  (section 1.2.3). Pour un filament avec un rapport d’aspect de 4, dont on peut dire avec certitude qu’il flambe au vu de la figure C.5, le critère élastique donne  $\sigma_{comp} \approx 10^4 Pa$ . Le kaolin est fluide à cette contrainte, donc la description purement élastique du matériau au moment du flambement n’est pas correcte.

L’analyse des images des expériences donne le moyen de quantifier l’écrasement d’une part et le flambement d’autre part. L’écrasement est repéré par l’augmentation uniforme du rayon du filament, et le flambement par la courbure de l’axe central. Il apparaît que lorsque la hauteur de l’expérience augmente, le rayon moyen du filament augmente moins vite, et l’axe central se courbe plus vite. Dans des cas intermédiaires, le rayon et l’axe central évoluent dans des proportions similaires. Pour  $H = 2cm$  par exemple, c’est essentiellement le rayon qui augmente sur les premiers temps (courbes jusqu’aux jaunes), puis l’axe central commence à s’écarter de l’axe z pour les courbes rouges. Ces résultats suggèrent que pour décrire le flambement du kaolin, il est cohérent de proposer un critère basé sur la compétition entre l’écrasement et le flambement, de manière similaire à ceux connus pour les tiges élastiques et filaments visqueux, mais rendant compte de la plasticité du kaolin. Les résultats aux diamètres de 0.5 et 2cm montrés sur les figures C.6 et C.7 suggèrent en plus que la dynamique de démarrage du flambement dépend du rapport  $\frac{H}{D_0}$ .

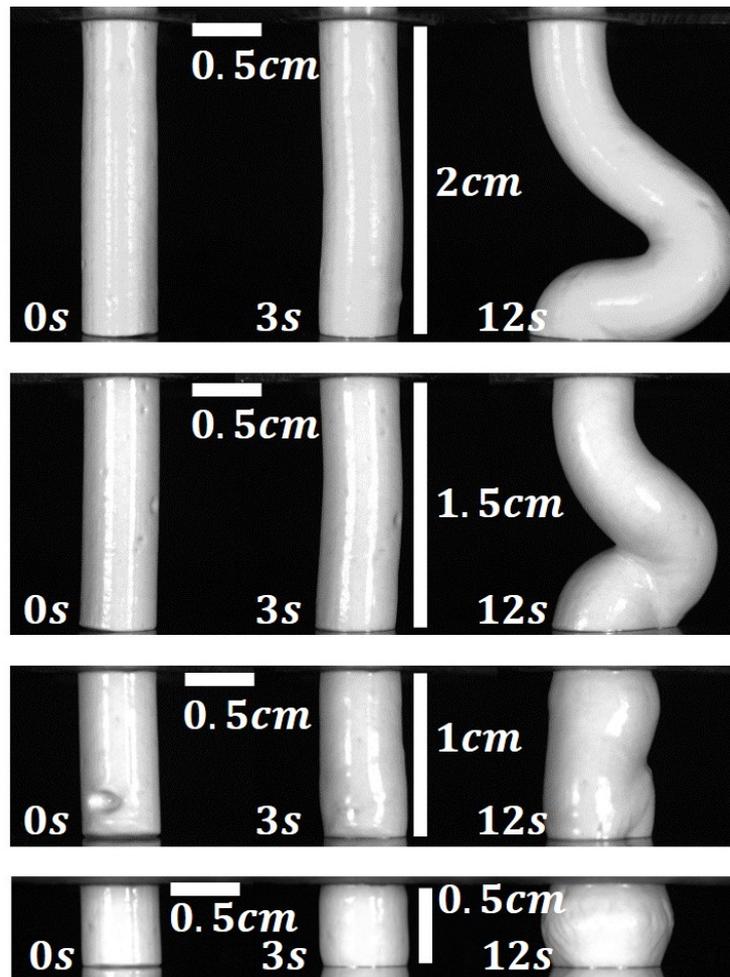


FIGURE C.6 – Expériences de compression (par extrusion) d’un filament de kaolin à  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 0.5\text{cm}$  et  $V_{\text{sortie}} = 0.5\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ , pour des hauteurs de filament de 2, 1.5, 1 et 0.5cm (de haut en bas). Pour chaque hauteur, on montre à gauche 3 photographies du filament à 0, 3 et 12s d’extrusion

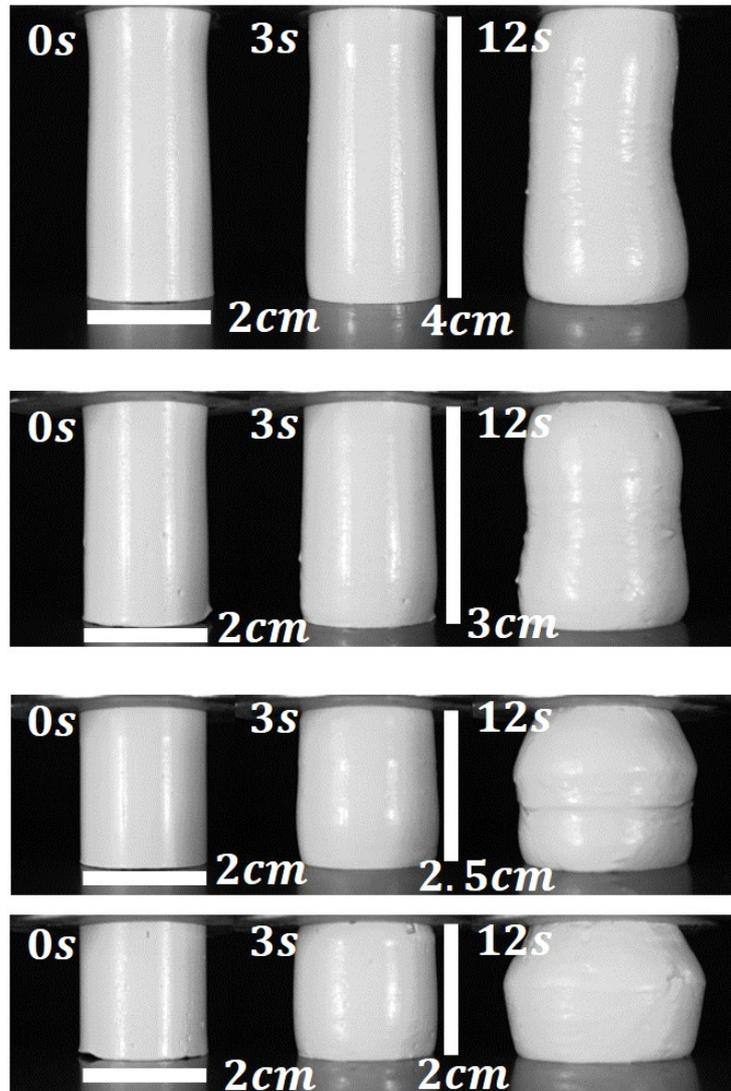


FIGURE C.7 – Expériences de compression (par extrusion) d’un filament de kaolin à  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 2\text{cm}$  et  $V_{\text{sortie}} = 2\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ , pour des hauteurs de filament de 4, 3, 2.5 et 2cm (de haut en bas). Pour chaque hauteur, on montre à gauche 3 photographies du filament à 0, 3 et 12s d’extrusion

## Annexe D

# Données de cartographies des dépôts complémentaires

On montre les cartographies des motifs obtenus avec la buse de 1.2mm. Ces données fournissent un complément pour les analyses du chapitre 5. On montre les données de cartographie sous la forme  $(H^*, V^*)$ . La hauteur  $H$  vaut  $1.2 * H^*$  (mm) et la vitesse de translation de la buse  $V_{trans}$  vaut  $\bar{V}_{sortie} * V^* = 10 * V^*$  (mm.s<sup>-1</sup>) pour toutes ces cartographies.

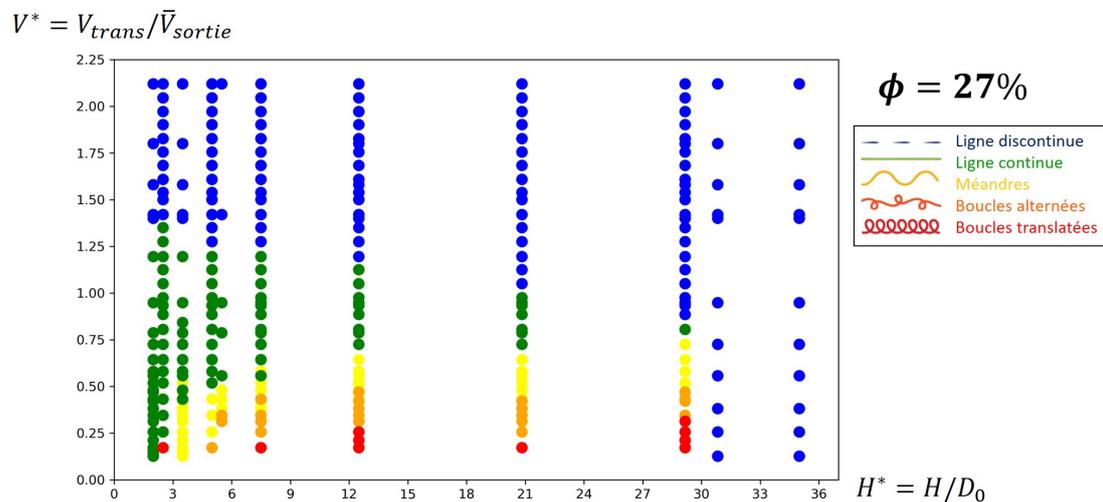


FIGURE D.1 – Cartographie  $(H^*, V^*)$  des motifs de kaolin à  $\phi = 27\%$ ,  $D_0 = 1.2mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$

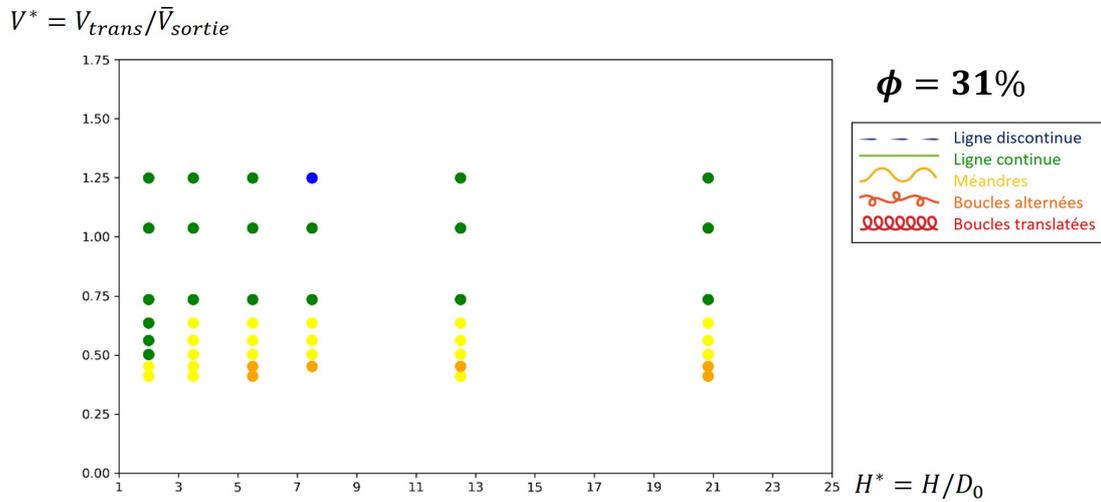


FIGURE D.2 – Cartographie  $(H^*, V^*)$  des motifs de kaolin à  $\phi = 31\%$ ,  $D_0 = 1.2mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$

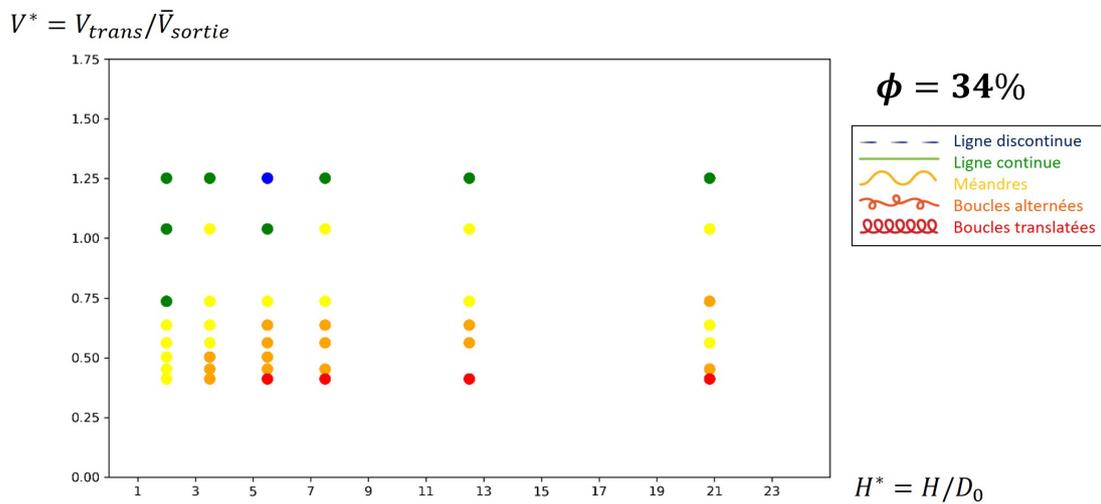


FIGURE D.3 – Cartographie  $(H^*, V^*)$  des motifs de kaolin à  $\phi = 34\%$ ,  $D_0 = 1.2mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$

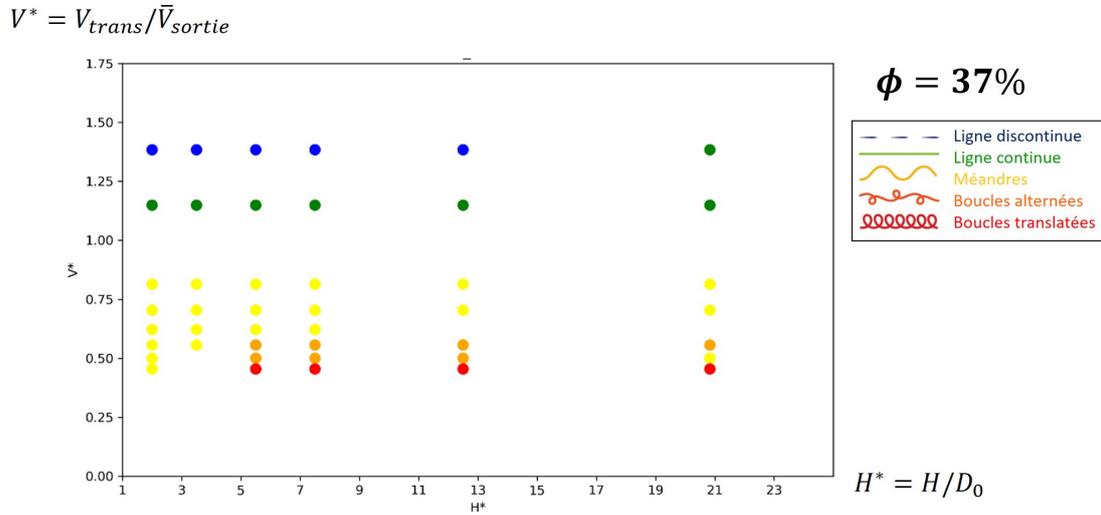


FIGURE D.4 – Cartographie  $(H^*, V^*)$  des motifs de kaolin à  $\phi = 37\%$ ,  
 $D_0 = 1.2mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$

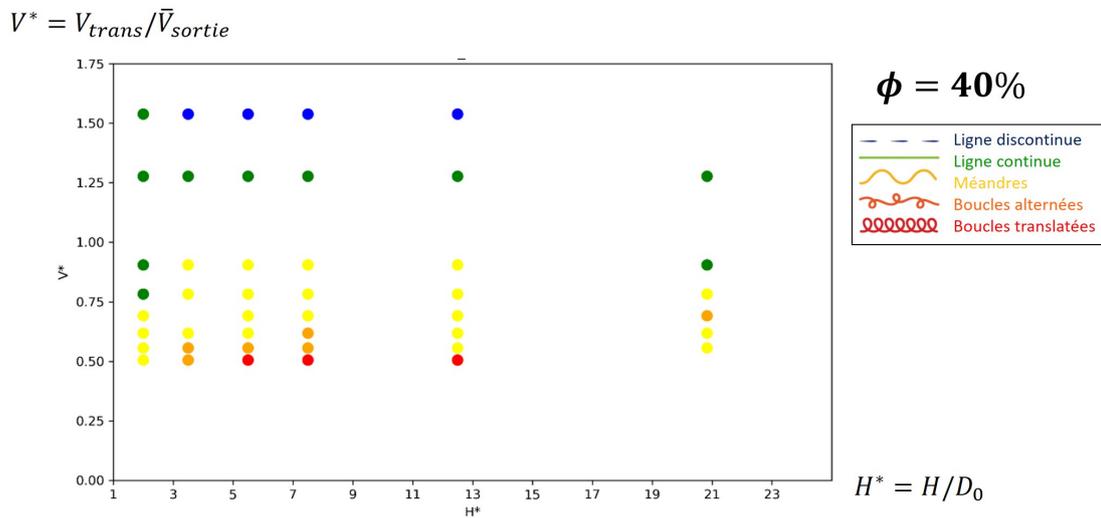


FIGURE D.5 – Cartographie  $(H^*, V^*)$  des motifs de kaolin à  $\phi = 40\%$ ,  
 $D_0 = 1.2mm$  et  $\bar{V}_{sortie} = 10mm.s^{-1}$