Rhéologie de suspensions concentrées à pression imposée : un pont entre les suspensions et les écoulements granulaires

F. BOYER, E. GUAZZELLI ET O. POULIQUEN

. IUSTI, Aix-Marseille Université - CNRS, 5 rue Enrico Fermi, 13453 MARSEILLE

Résumé :

La rhéologie des suspensions concentrées reste mal comprise : faisant intervenir à la fois des interactions hydrodynamiques et de contact, ce sont des systèmes intermédiaires entre les suspensions diluées et les écoulements granulaires. Nous présentons des mesures rhéologiques issues d'une approche nouvelle permettant d'éviter les divergences observées à forte concentration : en choisissant la pression particulaire comme paramètre de contrôle, la rhéologie s'exprime en terme de loi friction effective et d'une loi de dilatance similaires à celles proposées récemment pour les milieux granulaires . Nous montrons la compatibilité entre cette nouvelle approche et la description classique des suspensions en termes de viscosité effective.

Abstract :

The rheology of concentrated suspensions remains poorly deciphered : as both hydrodynamic and contact interactions come into play, they lie between diluted suspensions and granular flows. We report rheological measurements using a new approach allowing us to avoid singularities observed at high concentration : when the granular pressure is chosen as a control parameter, rheological laws are given as an effective friction and dilatancy laws which are found similar to those recently proposed for granular media. We show that this new approach is equivalent to the classical description of flowing suspensions in terms of effective viscosity.

Mots clefs : suspensions denses ; écoulements granulaires ; rhéologie

1 Introduction et considérations théoriques

Depuis plus d'un siècle, les suspensions de particules dispersées dans un liquide ont été l'objet de nombreuses études à la fois théoriques, numériques et expérimentales. La principale raison de cet intérêt constant réside dans leur ubiquité dans une large gamme de domaines d'application : génie civil, industrie pharmaceutique ou agroalimentaire, écoulements géophysiques ou biologiques. Si les échelles de temps et de longueur de ces phénomènes diffèrent, des propriétés communes d'écoulement peuvent être dégagées, notamment grâce à l'étude de systèmes modèles où les interactions entre particules restent simples. En particulier, un mélange constitué de particules sphériques, rigides et non-Browniennes suspendues dans un liquide Newtonien de même densité se comporte tel un milieu continu effectif Newtonien (au sens où la contrainte τ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ sont proportionnels) dont la viscosité effective relative η_s n'est fonction que de la concentration,

$$\tau = \eta_s(\phi) \ \eta_f \dot{\gamma},\tag{1}$$

où η_f est la viscosité du fluide suspendant [9]. Les travaux précurseurs d'Einstein [5] ont permis le calcul du premier ordre en ϕ de la fonction $\eta_s(\phi)$,

$$\eta_s(\phi) = 1 + \frac{5}{2}\phi + O(\phi^2)$$
(2)

Dans le régime concentré, lorsque les distances inter-particulaires deviennent inférieures au rayon des particules, la microstructure (l'arrangement spatial des particules à l'échelle microscopique) et le détail des interactions à courte portée (ici, uniquement lubrification et friction) complexifient non seulement la dérivation théorique des équations constitutives mais rendent également expériences et simulations numériques dépendantes d'un grand nombre de paramètres plus ou moins bien contrôlés (polydispersité, rugosité des particules, interactions colloïdales, homogénéité spatiale de la fraction volumique et du cisaillement)[15, 12]. Sur la base de ces résultats, des corrélations empiriques ont été proposées pour décrire la rhéologie des suspensions concentrées mais la dispersion des données disponibles n'a pas permis à ce jour de consensus général sur la forme mathématique d'un modèle rhéologique complet et universel. Par exemple, la viscosité effective $\eta_s(\phi)$ en régime concentré est généralement exprimée sous la forme

$$\eta_s(\phi) = f_1(\phi)(1 - \frac{\phi}{\phi_m})^{-n} \text{ pour } \phi \longrightarrow \phi_m$$
(3)

où ϕ_m est la fraction volumique maximale au delà-de laquelle il n'est plus possible d'imposer un cisaillement macroscopique, et $f_1(\phi)$ une fonction telle que $(1 + n\phi/\phi_m)f_1(\phi) = 1 + 5\phi/2 + O(\phi^2)$ afin d'établir la compatibilité avec la viscosité d'Einstein en régime dilué. De nombreuses études se sont attachées à la détermination de cette loi constitutive : les fractions volumiques maximales ϕ_m rapportées dans la littérature peuvent alors varier entre 0.58 et 0.68 et l'exposant de la divergence n entre 1 et 4 [15]. Un nombre plus restreint de travaux s'est intéressé au problème des contraintes normales générées en écoulement. Il a récemment été observé que le cisaillement d'une suspension concentrée de particules non-Browniennes fait apparaître une pression granulaire Π^p (et donc, par incompressibilité de la suspension, une tension du fluide), analogue de la pression osmotique dans les systèmes Browniens [4]. Par le même argument dimensionnel, la contrainte normale Π^p est proportionnelle à $\eta_f \dot{\gamma}$:

$$\Pi^p = -(1/3)Tr(\mathbf{\Sigma}^\mathbf{P}) = \eta_n(\phi) \ \eta_f \dot{\gamma} \tag{4}$$

où $\eta_n(\phi)$ est la viscosité effective "normale" [11, 12]. La fonction $\eta_n(\phi)$ est également divergente en ϕ_m et il est généralement supposé que l'ordre n de cette divergence est semblable à celui de la viscosité de cisaillement

$$\eta_n(\phi) = f_2(\phi)(1 - \frac{\phi}{\phi_m})^{-n}.$$
(5)

Là encore les difficultés expérimentales ou numériques liées à l'approche de cette singularité à fraction volumique imposée ont conduit à une dispersion assez grande des résultats et des modèles empiriques proposés.

Plus récemment, les écoulements denses de milieux constitués d'un grand nombre de particules solides (communément appelés milieux granulaires) ont également été décrits en termes de milieux continus équivalents [8] [voir [6] pour une revue]. Alors que de telles tentatives s'étaient révélées infructueuses par le passé, le succès de cette approche réside notamment dans le choix approprié des paramètres de contrôle du système. En effet, il a depuis longtemps été mis en évidence que de tels milieux avait la propriété de se "dilater" en écoulement (au sens où la fraction volumique, c'est -à-dire le rapport entre le volume occupé par la phase granulaire et le volume total, dépend des caractéristiques de l'écoulement). Ce phénomène brisant la condition d'incompressibilité, la pression au sein du milieu granulaire devient un paramètre de contrôle pertinent. A pression imposée, la rhéologie des milieux granulaires est non singulière et, à l'aide d'arguments dimensionnels [14], des lois constitutives simples ont été proposées et se sont révélées particulièrement robustes dans un grand nombre de configurations différentes[8, 7]. En effet, lorsqu'un milieu granulaire (sec) est soumis à une pression Π^p et un taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, le système est caractérisé par un seul nombre sans dimension, généralement appelé nombre inertiel,

$$I = \frac{d\dot{\gamma}}{\sqrt{\Pi^p / \rho_p}} \tag{6}$$

où d est le diamètre des particules et ρ_p leur masse volumique. Le nombre I peut alors être interprété comme le rapport entre un temps macroscopique d'écoulement $1/\dot{\gamma}$ et un temps microscopique (inertiel)

de réarrangement $d/\sqrt{\Pi^p/\rho_p}$ (temps de chute libre d'une particule de masse volumique ρ_p soumis à la pression Π^p sur une distance égale à son diamètre d) [14]. La rhéologie granulaire est obtenue sous la forme d'une loi de friction effective $\mu(I)$ et d'une loi de fraction volumique $\phi(I)$ [7]

$$\tau = \mu(I) \Pi^p, \tag{7}$$

$$\phi = \phi(I). \tag{8}$$

Lorsqu'une telle approche est appliquée au cas de granulaires immergés dans un liquide visqueux ou à celui de suspensions concentrées de particules non-Browniennes, si le nombre de Stokes $St = \rho_p d^2 \dot{\gamma} / \eta_f$ reste petit alors le mouvement des particules sera contrôlé par les forces visqueuses (et non par l'inertie), par conséquent, un nombre visqueux I_v doit être substitué au nombre inertiel

$$I_v = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{\Pi^p},\tag{9}$$

 I_v pouvant toujours être interprété comme le rapport ente le temps $1/\dot{\gamma}$ et un temps microscopique (visqueux) de réarrangement η_f/Π^p . Il a ensuite été suggéré que les lois constitutives s'exprimaient identiquement aux équations (7) et (8), ayant substitué I par I_v [3]

$$\tau = \mu(I_v) \Pi^p, \tag{10}$$

$$\phi = \phi(I_v). \tag{11}$$

Il est alors intéressant de constater que cette formulation est équivalente à celle donnant les viscosités effectives en cisaillement $\eta_s(\phi)$ et en contraintes normales $\eta_n(\phi)$. En effet, les équations (10) et (11) peuvent être réécrites en fonction de ϕ sous la forme

$$\eta_s(\phi) = \frac{\mu[I_v(\phi)]}{I_v(\phi)},\tag{12}$$

$$\eta_n(\phi) = \frac{1}{I_v(\phi)}.$$
(13)

Dans cet article, nous présentons des mesures de rhéologie des suspensions denses à pression granulaire imposée et déterminons expérimentalement les fonctions $\mu(I_v)$ et $\phi(I_v)$. Nous montrons ensuite l'accord quantitatif avec la formulation à fraction volumique imposée.

2 Rhéométrie à pression imposée

2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué d'une cellule de cisaillement annulaire de rayon externe $R_2 = 90$ mm et de diamètre interne $R_1 = 44$ mm (voir figure 1). Le plateau supérieur est actionné par un rhéomètre MCR 501 utilisé à couple et à force normale imposés. Afin de laisser au système la possibilité de se dilater, le plateau supérieur est troué et recouvert d'une grille de maille 200 microns. Le fond de la cellule est conique afin d'assurer une homogénéité radiale du cisaillement lorsque le plan du plateau supérieur intercepte le sommet du cône (position de référence). Dans cette configuration, l'entrefer est de 8.8 mm à la paroi interne et de 18 mm à la paroi externe (noté g sur la figure 1) et le volume cisaillé est $V_0 = 255$ cm³.

Les suspensions utilisées sont composées de particules de polystyrène de diamètre 580 microns dispersées dans un fluide newtonien de même masse volumique ($\rho = 1.05 \text{ g.cm}^3$) et de grande viscosité ($\eta_f = 2.5 \text{ Pa.s}$). La fraction volumique initiale ϕ_1 est contrôlée par la détermination des masses de particules et de liquide. Un volume V_1 (également déterminé par pesée) de ce mélange est versé dans la cellule de cisaillement et le plateau supérieur est alors abaissé à sa position de référence. La fraction volumique de la suspension contenue dans l'entrefer est alors $\phi_0 = \phi_1 V_1/V_0$. On nomme par la suite $\delta = g - g_0$ la position du plateau supérieur (entrefer) relativement à la position de référence.



FIGURE 1 – Dispositif expérimental de rhéométrie à pression imposée : (a) vue 3D de la cellule de cisaillement, (b) paramétrage de la cellule, (c) (d) et (e) signaux typiques de pression, taux de cisaillement et fraction volumique.

On impose à l'aide du rhéomètre un couple M et une force normale F et on mesure la vitesse ω de rotation du plateau supérieur et sa position g. Par de simples arguments géométriques, on détermine alors la contrainte de cisaillement $\tau = 3M/2\pi(R_2^3 - R_1^3)$, la contrainte normale $P = F/\pi(R_2^2 - R_1^2)$, le taux de cisaillement $\dot{\gamma} = \omega R_2/g$ et la fraction volumique solide $\phi = \phi_0/1 + f(\delta)$ avec $f(\delta) =$ $3R_2(R_2^2 - R_1^2)\delta/2(R_2^3 - R_1^3)g$. Lorsqu'un couple M et une force normale F (c'est-à-dire une contrainte de cisaillement τ et une pression P) sont appliqués sur le plateau supérieur, la vitesse ω et la position horizontale δ (c'est-à-dire le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ et la fraction volumique ϕ) évolue vers un état stationnaire en une trentaine de minutes [voir figures 1 (d) et (e)]. Dans cet état stationnaire, la pression imposée est alors complètement équilibrée par la pression granulaire $\Pi_p = P$. On détermine alors les nombres sans dimensions μ , I_v et ϕ précédemment introduits.

2.2 Lois de friction et de fraction volumique en écoulement de cisaillement simple à pression imposée



FIGURE 2 – (a) Friction effective μ en fonction de I_v (semi-logarithmique) pour deux fractions volumiques de référence $\phi_0 = 0.565$ (en bleu) et $\phi_0 = 0.425$ (en rouge), ajustement par l'expression 14 (en pointillés). (b) Fraction volumique d'équilibre ϕ en fonction de I_v (semi-logarithmique) pour les mêmes conditions expérimentales, ajustement par l'expression 15 (en pointillés). Inserts : même données représentées sur une échelle linéaire.

La figure 2 (a) montre l'évolution du coefficient de friction effective $\mu = \tau/\Pi^p$ en fonction de $I_v = \eta_f \dot{\gamma}/\Pi^p$ pour des pressions imposées variant entre 20 et 250 Pa et deux fractions volumiques de référence $\phi_0 = 0.565$ (en bleu) et $\phi_0 = 0.425$ (en rouge). Le regroupement des données sur une unique courbe

maîtresse $\mu(I_v)$ justifie le choix de la loi d'échelle visqueuse [equation (9)] et d'une formulation en terme de rhéologie frictionnelle [equation (10)]. De manière similaire aux granulaires secs (inertiels), la friction μ est une fonction croissante de I_v et $\mu(I_v)$ admet une limite finie en $I_v = 0$, $\lim_{I_v \to 0} \mu =$ $\mu_1 = 0.30 \pm 0.03$. A pression imposée, μ_1 définit un seuil d'écoulement généralement exprimé sous la forme $\mu_1 = \tan \theta_1$, où θ_1 est l'angle d'avalanche. On trouve alors $\theta_1 = 17^\circ$ en bon accord avec la valeur généralement rapportée dans les milieux granulaires, $\theta_1 = 21^\circ$.

Contrairement aux cas des milieux granulaires secs, la fonction $\mu(I_v)$ ne semble pas tendre vers une limite finie en $I_v \to \infty$, en raison de la présence du fluide interstitiel visqueux. On modélise alors l'évolution de μ par la somme de deux termes : un terme ayant une forme similaire à la loi constitutive $\mu(I)$ proposé pour les granulaires secs et un terme permettant de rendre compte de l'évolution non convergente aux grandes valeurs de I_v . La figure 2 (a) montre un bon accord avec la corrélation

$$\mu(I_v) = \mu_1 + \frac{\mu_2 - \mu_1}{1 + I_0/I_v} + I_v + \alpha I_v^{1/2}$$
(14)

où les valeurs de $\mu_2 = 0.7 = \tan 35^\circ$ et $I_0 = 0.006$ sont proches des valeurs observées dans les milieux granulaires [3, 8], et $\alpha = 1.5$ est un paramètre ajustable.

La figure 2 (b) montre l'évolution de la fraction volumique d'équilibre ϕ en fonction de I_v pour les mêmes conditions expérimentales. Ici encore, on observe un très bon regroupement des données sur une unique courbe $\phi(I_v)$ [equation (11)]. La fraction volumique ϕ est une fonction décroissante de I_v et reflète la dilatation de la phase granulaire sous cisaillement et pression imposés (la même tendance est observée en milieu granulaire). $\phi(I_v)$ admet également une limite finie en $I_v = 0$, $\lim_{I_v \to 0} \phi = \phi_m = 0.585 \pm 0.05$, ce qui représente la fraction volumique maximale d'un empilement cisaillé uniformément, que l'on trouve en bon accord avec la fraction volumique critique des écoulements granulaires secs. L'évolution de la fraction volumique ϕ avec I_v est bien ajustée par la fonction

$$\phi(I_v) = \frac{\phi_m}{1 + I_v^{1/2}}.$$
(15)

Notons alors que la forme proposée ici pour $\phi(I_v)$ est identique avec celle dérivée théoriquement par Mills et Snabre[10] (leur équation (17)) si la dissipation visqueuse est considérée homogène, la distance moyenne entre particules étant prise comme échelle de longueur. En revanche, leur prédiction pour $\mu(I_v)$ s'écarte considérablement des résultats présentés ici.

2.3 Compatibilité avec la rhéologie à fraction volumique imposée



FIGURE 3 – (a) Viscosité effective de cisaillement η_s (a) et normale η_n (b) en fonction de ϕ [$\phi_0 = 0.565$ (en bleu) et $\phi_0 = 0.425$ (en rouge)], ajustement par la corrélation proposée par Zarraga [16] (en pointillés vert) et données expérimentales de pression granulaire à ϕ imposée [4].

En utilisant les équations (12) et (13), on peut représenter les données précédentes sous la forme des deux fonctions rhéologiques définies à fraction volumique imposées $\eta_s(\phi)$ et $\eta_n(\phi)$. La figure 3 (a)

montre l'accord de nos données avec une corrélation proposée par Zarraga *et al.* [16] pour la viscosité effective $\eta_s(\phi)^1$. De la même façon, la figure 3 (b) montre l'évolution de la viscosité normale $\eta_n(\phi)$ calculée à partir de nos données expérimentales. Un bon accord est observé à la fois avec la corrélation proposée par Zarraga *et al.* [16] et les mesures de pression granulaire réalisées par Deboeuf *et al.* [4].

3 Conclusions

En utilisant une cellule de cisaillement annulaire à pression imposée, nous avons mis en évidence la pertinence d'une loi d'échelle visqueuse pour la description rhéologique d'une suspension dense. de particules non-colloïdales. S'inspirant de la démarche développée pour les milieux granulaires, la rhéologie est donnée par une loi frictionnelle $\mu(I_v)$ et une loi de fraction volumique $\phi(I_v)$ dont nous avons montré la compatibilité quantitative de ce formalisme avec la rhéologie à fraction volumique imposée. Cette méthode permet de s'approcher de la fraction volumique maximale et d'effectuer des mesures de contraintes normales dans une gamme de concentrations jusqu'alors inaccessible. Enfin, les lois constitutives alors obtenues sont non singulières et permettent la description des grandeurs rhéologiques sur une large gamme des paramètres d'écoulement.

Références

- Brady, J. F. and J. F. Morris 1997 Microstructure of strongly-sheared suspensions and its impact on rheology and diffusion. J. Fluid Mech. 348 103–139
- [2] Bonnoit, et al. 2010 Inclined plane rheometry of a dense granular suspension. J. Rheol. 54 65
- [3] Cassar, C., Nicolas, M., & Pouliquen, O. 2005 Submarine granular flows down inclined planes. *Phys. Fluids* 17 103301
- [4] 2009 Particle pressure in a sheared suspension : A bridge from osmosis to granular dilatancy. *Phys. Rev. Lett.* 102 108301.
- [5] Einstein, A. 1905 Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. Annalen der Physik (4) 17 549–560.
- [6] Forterre, Y. & Pouliquen, O. 2008 Flows of dense granular media . Annu. Rev. Fluid Mech. 40 1.
- [7] GDR MiDi 2004 On dense granular flows. Eur. Phys. J. E 14 341–365.
- [8] Jop, P., Forterre, Y. & Pouliquen, O. 2006 A constitutive law for granular flows. Nature 441 727–730.
- [9] Krieger, I. M. 1963 A dimensional approach to colloid rheology. Trans. Rheol. Soc. 7 101–109.
- [10] Mills, P. & Snabre, P. 2009 Apparent viscosity and particle pressure of a concentrated suspension of non-Brownian hard spheres near the jamming transition. *Eur. Phys. J. E.* **30** 309–316.
- [11] Morris, J. F. & Boulay, F. 1999 Curvilinear flows of noncolloidal suspensions : the role of normal stresses. J. Rheol 43 1213–1237.
- [12] Morris, J. F. 2009 A review of microstructure in concentrated suspensions and its implication for rheology and bulk flow. *Rheol. Acta* 48 909–923.
- [13] Ovarlez, G., Bertrand, F. & Rodts, S. 2006 Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through MRI. J. Rheol. 50 259–292.
- [14] Pouliquen, O. 1999 Scaling laws in granular flows down rough inclined planes. Phys. Fluids 11 542–548.
- [15] Stickel, J. J. & Powell, R.L. 2005 Fluid mechanics and rheology of dense suspensions. Annu. Rev. Fluid Mech. 37 129–149.
- [16] Zarraga, I. E., Hill, D. A. & Leighton, D. T. 2000 The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids. J. Rheol. 44 185–220.

^{1.} Le choix de cet ajustement est justifié par son très bon accord avec des données expérimentales récentes [2, 13].