

# Mesures locales de la viscosité dans les suspensions non-browniennes concentrées

F. BLANC, F. PETERS, E. LEMAIRE

Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (LPMC, UMR 6622), Parc Valrose, 06108 NICE cedex 2

## Résumé :

*Nous présentons des expériences de rhéométrie en géométrie de Couette cylindrique large gap couplées à des mesures de PIV qui nous permettent de déterminer la viscosité locale de suspensions dont les concentrations en particules peuvent aller jusqu'à 50%. Les suspensions que nous étudions sont non-browniennes, isodenses et les écoulements sont à bas nombre de Reynolds. Nous nous intéressons particulièrement au comportement visqueux transitoire d'une suspension lors d'une inversion du cisaillement.*

## Abstract :

*We present an experimental facility that allows simultaneous viscosimetric and Particle Image Velocimetry measurements on concentrated suspensions in a wide-gap Couette rheometer. The particle suspension concentrations can be as high as 50%. The suspensions are non-Brownian, density- matched and the flow is associated with a low Reynolds number. We are particularly interested in the transient behaviour during shear reversal.*

**Mots clefs :** PIV, suspensions concentrées, viscosité, microstructure, écoulement transitoire

## 1 Introduction

La rhéologie de suspensions concentrées pose encore de nombreuses questions. Même dans les cas les plus simples, quand les particules sont sphériques, monodisperses, qu'elles n'interagissent pas au travers de forces colloïdales, la littérature fait apparaître une dispersion assez importante dans les résultats, qu'il s'agisse des lois de comportement (relation contrainte /taux de cisaillement), de l'apparition de contraintes normales ou de la variation de la viscosité avec la fraction volumique de particules. La modélisation de la rhéologie des suspensions concentrées est compliquée par un important couplage entre la microstructure et l'écoulement et les expériences sont délicates à interpréter en raison de nombreux artefacts comme la migration de particules induite par l'écoulement ou le glissement de la suspension aux parois. Durant ces dix dernières années, on a vu se développer des expériences très fructueuses de rhéologie locale qui ont permis de résoudre plusieurs problèmes et d'avancer sensiblement dans la caractérisation du comportement visqueux des suspensions concentrées. Citons en particulier les résultats d'Ovarlez et al. [1], obtenus en Imagerie par Résonance Magnétique et qui montrent que le comportement pseudo-plastique parfois reporté provient d'une migration rapide des particules. D'autres expériences réalisées en Vélocimétrie Laser Doppler (LDV) [2] ont mis en évidence le glissement à la paroi. Nous proposons ici de mesurer la viscosité locale d'une suspension en utilisant la vélocimétrie par image de particules (PIV).

## 2 Mesure locale de la viscosité par PIV.

### 2.1 Principe

Une suspension de particules dont l'indice optique est le même que celui du fluide suspendant est placée dans un rhéomètre (Mars II, Haake, Thermofisher) de Couette cylindrique. Une faible part des particules (0.25%) est marquée par un fluorochrome (Nile blue A). La cellule de Couette transparente est éclairée par une nappe laser (Lasiris TEC Laser, Stockeryale, 635 nm, 35mW) perpendiculaire à l'axe de révolution des cylindres. Une caméra (PLB 741 U, Pixelink, 1280x1024 pix<sup>2</sup>) située sous le cylindre externe enregistre l'image des particules marquées qui fluorescent dans le plan laser (figure 1). Le déplacement des marqueurs est

déterminé par corrélation d'images successives. De là, on déduit le champ de vitesse,  $v(r,t)$  dans la suspension et l'on calcule le taux de cisaillement local:

$$\dot{\gamma} = r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{v(r,t)}{r} \right) \quad (1)$$

Le champ de contrainte auquel est soumise la suspension est donné par le couple,  $\Gamma$ , exercé par un cylindre interne de longueur  $L$ :

$$\sigma(r,t) = \frac{\Gamma(t)}{2\pi L r^2} \quad (2)$$

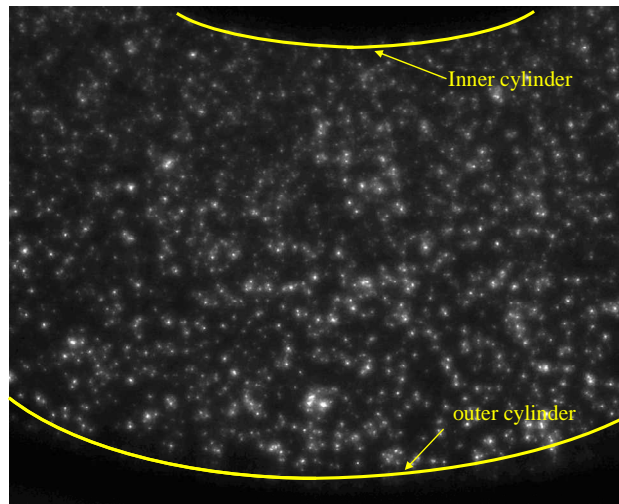


FIG.1- Image d'une suspension contenant 45% de particules

Cette expression n'est valide que pour un cylindre infiniment long, ce qui est loin d'être le cas dans notre expérience où les rayons des cylindres internes et externes sont respectivement 14 et 24 mm et leur longueur 5 cm. En faisant varier la hauteur de liquide entre les cylindres, nous avons mesuré le couple induit par la présence du fond des cylindres et l'avons soustrait à la valeur du couple appliqué par le rhéomètre pour obtenir le couple,  $\Gamma$ , utile au cisaillement entre les deux cylindres [3].

Connaissant  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$ , nous déduisons la viscosité locale,  $\eta$ :

$$\eta(r,t) = \frac{\sigma(r,t)}{\dot{\gamma}(r,t)} \quad (3)$$

## 2.2 Caractéristiques de la suspension

La difficulté majeure de PIV utilisée dans les suspensions concentrées est l'ajustement de l'indice de réfraction des particules et du fluide suspendant. Nous utilisons des particules de PMMA (CA 30, microbeads) et une huile newtonienne de viscosité 1.02 Pa.s fabriquée sur mesure par Cargille S.A. pour adapter simultanément l'indice et la densité des particules. Un ajustement fin de l'indice est ensuite réalisé en contrôlant la température de la suspension. Une mesure de la transmittance en fonction de la température montre que la meilleure adaptation d'indice est réalisée pour  $T = 34^\circ\text{C}$ . L'ensemble de l'expérience est alors placé dans une enceinte thermostatée à  $34^\circ\text{C}$  [3]. Dans ces conditions, les suspensions sont assez transparentes même lorsqu'elles sont très concentrées en particules (jusqu'à 50% en volume) pour que le profil de vitesse puisse être mesuré 14 mm au dessus du fond du cylindre externe, altitude à laquelle nous avons pu montrer que l'influence du fond sur le profil de vitesse était négligeable.

Les suspensions que nous étudions sont non-browniennes. En effet, les particules sont monodisperses de diamètre  $30\mu\text{m}$ , ce qui, compte tenu des valeurs typiques des taux de cisaillement enregistrées dans nos expériences, conduit à des nombres de Peclet très supérieurs à 1 :

$$Pe = \frac{6\pi\eta_0 a^3 \dot{\gamma}}{kT} \sim 10^5 - 10^7 \quad (4)$$

Et à des nombres de Reynolds très inférieurs à 1:

$$Re_p = \frac{\rho \dot{\gamma} (R_2 - R_1)^2}{\eta_0} \sim 10^{-4} - 10^{-2} \quad (5)$$

### 3 Évolution temporelle de la viscosité – migration de particules

La figure 2 représente l'évolution du profil de vitesse dans le gap entre les deux cylindres au cours du temps

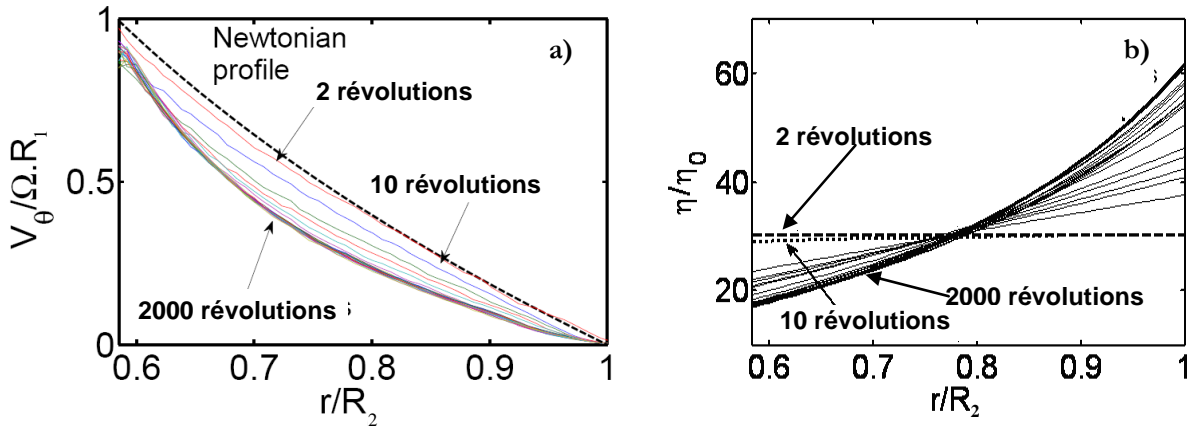


FIG.2 –Évolution temporelle du profil de vitesse (a) et du profil de viscosité (b) mesurés à 14 mm au-dessus du fond des cylindres dans une suspension contenant 44.4% de particules. Le cylindre interne tourne à une vitesse de 1 tr/min.

De ces profils, nous pourrions déduire des profils de concentration en particules au cours du temps puisque la viscosité stationnaire d'une suspension n'est supposée dépendre que de la fraction volumique de particules. Cependant l'étude de la migration induite par un écoulement n'est pas l'objet de l'étude présente. Observons plutôt que pour une certaine valeur du rayon (ici  $r/R_2=0.77$ ), la viscosité ne varie pas ou peu au cours du temps. On peut donc supposer qu'il en est de même pour la fraction volumique. L'existence de ce point où la fraction volumique reste inchangée lors de la migration a déjà été observée expérimentalement [4] est prédite par les modèles de migration [4, 5]. Nous allons dans la suite de l'étude présentée ici, nous placer à cette valeur particulière du rayon pour mesurer l'évolution de la viscosité de la suspension quand le sens de rotation du cylindre interne est inversé.

### 4 Évolution de la viscosité lors d'une inversion de cisaillement.

Il est connu depuis les travaux de Gadala-Maria et Acrivos en 1980 [6] que lorsqu'on inverse le sens du cisaillement auquel est soumise une suspension, la viscosité chute brutalement, passe par un minimum,  $\eta_{\min}$ , et augmente à nouveau pour retrouver la valeur qu'elle avait avant l'inversion du sens de l'écoulement,  $\eta_{\text{plateau}}$ . Gadala-Maria et Acrivos ont en outre montré que la réponse transitoire de la suspension était contrôlée par la déformation,  $\gamma$ :

$$\gamma(r, t) = \int_0^t \dot{\gamma}(r, t') dt' \quad (6)$$

Nous avons revisité ces résultats en effectuant des mesures locales. Pour s'affranchir des effets de la migration et contrôler la fraction volumique, les mesures sont réalisées en  $r=0.77 R_2$ . De plus, la réponse transitoire étudiée s'étend sur des déformations de l'ordre d'une fraction de révolution donc bien plus petites que les déformations caractéristiques sur lesquelles a lieu la migration. Ces deux précautions nous assure un bon contrôle de la fraction volumique locale. À  $t=0$ , le couple appliqué au rotor change de signe et la viscosité de la suspension (eq.3) ainsi que la déformation (eq.6) sont enregistrées. La figure 3 montre la réponse

transitoire de suspensions de différentes fractions volumiques.

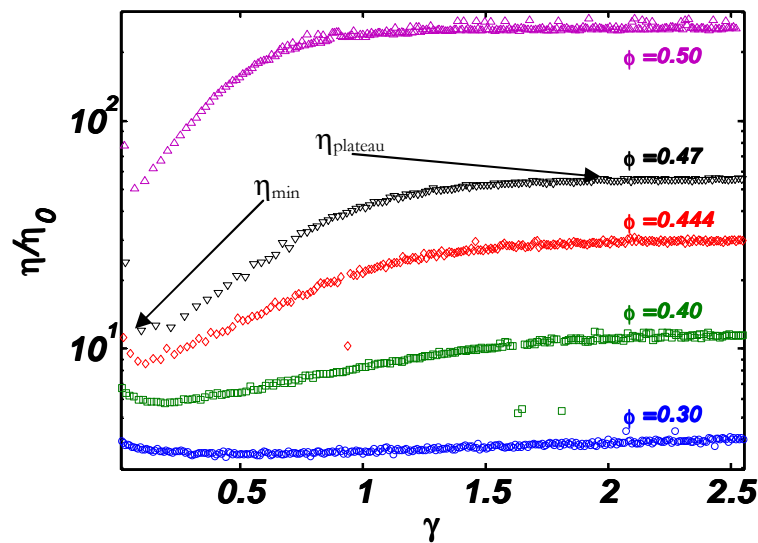


FIG.3 – Réponse transitoire de suspensions de différentes fractions volumiques

On peut noter que plus la fraction volumique solide est élevée et plus le minimum est marqué. La variation rapide de la viscosité a été interprétée par Gadala-Maria et Acrivos par le changement de microstructure qui survient quand le sens de l'écoulement est inversé. En effet, il a été montré numériquement [7] et expérimentalement [8] que la fonction de distribution de paires dans une suspension concentrée cisailée était anisotrope: le quadrant de dilatation est appauvri en particules tandis que le quadrant de compression compte un excès de particules. Ainsi, lors de l'inversion de cisaillement, l'axe de compression "enrichi" en particules et l'axe de dilatation "appauvri" en particules s'invertissent ; la suspension passe par un état plus ou moins isotrope qui correspond à une viscosité plus faible. En 2002, Narumi et al. invoquent la relaxation des forces de contact entre particules lorsque la microstructure s'inverse pour expliquer la chute brutale de la viscosité. On pourrait également penser que la dissipation visqueuse est plus faible dans une suspension isotrope où en moyenne les particules sont espacées régulièrement les unes des autres que dans une suspension structurée où les forces de lubrification présentes entre les particules proches les unes des autres sont responsables d'une augmentation de la dissipation moyenne. Il est vraisemblable qu'à la fois l'isotropie de la suspension et la relaxation des forces de contact jouent un rôle dans la réponse transitoire. Nous allons voir dans la suite que nos mesures nous encouragent à penser que la chute de viscosité est surtout imputable à la relaxation des forces de contact entre particules.

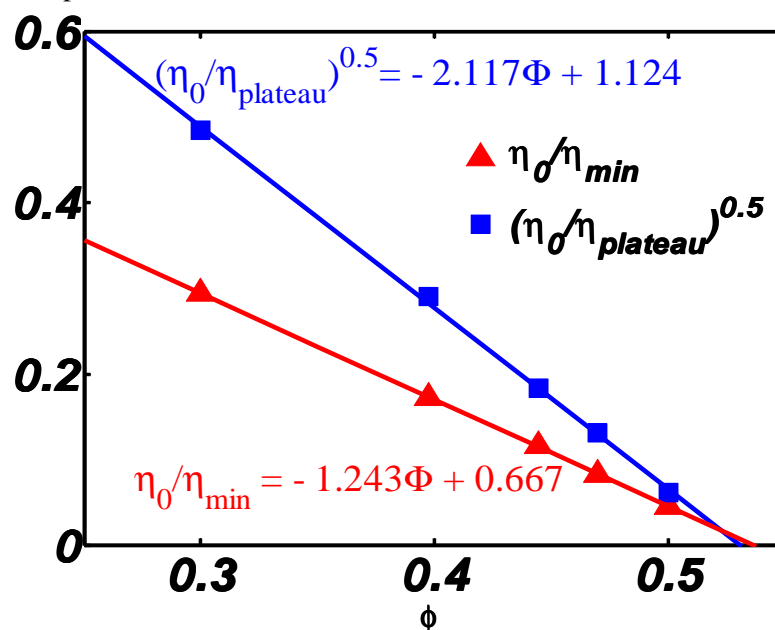


FIG.4 – Scaling de la viscosité minimum et de la viscosité de plateau avec la fraction volumique solide.

Sur la figure 4, on voit que les lois de variation de la viscosité au minimum,  $\eta_{\min}$ , et sur le plateau,  $\eta_{\text{plateau}}$ , avec la fraction volumique ne sont pas les mêmes.  $\eta_{\min}$  et  $\eta_{\text{plateau}}$  divergent pour une même fraction volumique, voisine de 0.535 mais la divergence de la viscosité minimum est en puissance (-1) tandis que la viscosité de plateau diverge, comme on a l'habitude de le voir, en puissance (-2). Il faut remarquer que la fraction volumique à laquelle divergent les viscosités au minimum et au plateau sont beaucoup plus faibles que celles que l'on a l'habitude de rencontrer dans la littérature. Nous avons attribué la faible valeur de cette fraction volumique de packing à l'existence de force polymériques entre particules. Il semble en effet qu'au moment de la synthèse des particules, une couche de cellulose soit adsorbée à leur surface. Les interactions stériques entre les couches de cellulose sont responsables d'une légère élasticité de la suspension et d'une diminution de la fraction volumique de packing par rapport à une suspension de sphères dures.

Les divergences en puissance (-1) de la viscosité au minimum et en puissance (-2) de la viscosité de plateau sont en accord étroit avec des prédictions faites par Mills et Snabre, en 2009 [9], qui prévoient une divergence de la viscosité d'une suspension en puissance (-1) lorsque les particules interagissent uniquement à travers des forces hydrodynamiques tandis qu'ils obtiennent une divergence quadratique quand des forces de contact sont présentes. Par ailleurs, les mesures de  $\eta_{\min}$  sont en bon accord avec des simulations en dynamique stokésienne [7, 10] concernant des suspensions où les particules ont été placées aléatoirement et qui ne sont donc pas structurées par l'écoulement.

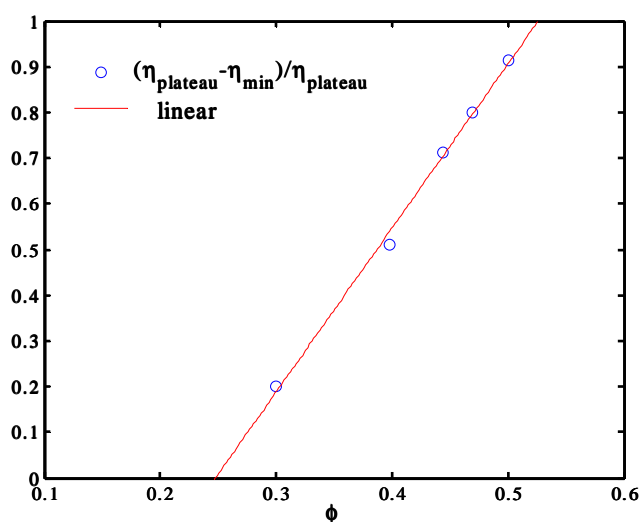


FIG. 5 – Différence des viscosités au minimum et au plateau, normalisées par la viscosité de plateau en fonction de la fraction volumique de particules.

La figure 5 représente le rapport de la différence des viscosités au plateau et au minimum, sur la viscosité au plateau en fonction de la fraction volumique. Une évolution quasi linéaire est clairement observable dont l'extrapolation en zéro fait apparaître une valeur critique de  $\phi$ :  $\phi_c \approx 0.25$ . Une telle dépendance n'est pas sans rappeler les résultats obtenus par Boyer et al. sur les différences de contraintes normales [11]. Boyer et al. mesurent les contraintes normales dans une suspension par effet Weissenberg inverse. Ils montrent que les différences de contraintes normales sont nulles (dans la limite de la résolution de leur expérience) jusqu'à une fraction volumique critique de l'ordre de 22% au-delà de laquelle les différences de contraintes normales normalisées par la viscosité de la suspension croissent linéairement. Ces similitudes de comportement des différences de contraintes normales et des différences de variation de viscosités lors d'une inversion de cisaillement suggèrent que la rhéologie des suspensions concentrées est essentiellement gouvernée par la microstructure.

## 5 Conclusion

Nous avons mis au point une expérience de rhéologie locale par PIV qui nous permet de mesurer la viscosité de suspensions à des concentrations élevées (50% de particules). Nous nous sommes intéressés au comportement visqueux transitoire de suspensions lors d'une inversion de cisaillement. Nos mesures locales confirment des résultats plus anciens obtenus par des études de rhéologie macroscopique: au moment de

l'inversion du cisaillement, la viscosité chute brutalement passe par un minimum pour croître à nouveau vers la valeur qu'elle avait avant l'inversion. Nous avons montré que la viscosité au minimum et au plateau divergeait pour approximativement la même valeur de la fraction volumique de particules,  $\sim \left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right)^\beta$  avec  $\phi^* \approx 0.535$  mais avec un exposant  $\beta$  différent ( $\beta = -1$  pour le minimum et  $\beta = -2$  pour le plateau.)

## References

- [1] Ovarlez, G., F. Bertrand, and S. Rodts, "Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging," *J. Rheol.* **50**, 259-292 2006.
- [2] Jana, S. C, B. Kapoor, and A. Acrivos, "Apparent wall slip velocity coefficients in concentrated suspensions of non colloidal particles," *J. Rheol.* **39**, 1123-1132, 1995.
- [3] Blanc, F., F. Peters, and E. Lemaire, "Particle Image Velocimetry in concentrated suspensions: application to local rheometry," *Appl. Rheol.* **21**, 23735. 2011
- [4] Phillips, R. J., R. C. Armstrong, R. A. Brown, A. L. Graham, and J. R. Abbott, "A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration," *Phys. Fluids A* **4**, 30-40, 1992.
- [5] Morris, J. F., and F. Boulay, "Curvilinear flows of noncolloidal suspensions: The role of normal stresses", *J. Rheol.* **43**, 1213-1237, 1999.
- [6] Gadala-Maria, F., and A. Acrivos, "Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres," *J. Rheol.* **24**, 799-814, 1980.
- [7] Sierou A., and Brady J.F., "Rheology and microstructure in concentrated noncolloidal suspensions," *J. Rheol.* **46**, 1031-1056, 2002.
- [8] Parsi, F., and F. Gadala-Maria, "Fore-and-aft asymmetry in a concentrated suspension of solid spheres," *J. Rheo.* **31**, 725-732, 1987.
- [9] Mills, P., and P. Snabre, "Apparent viscosity and particle pressure of a concentrated suspension of non-Brownian hard spheres near the jamming transition," *Eur. Phys. J. E: Soft Matter and Biological Physics*, **30** (3), 309-316, 2009.
- [10] Sierou, A., and J. F. Brady, "Accelerated Stokesian dynamics simulations," *J. Fluid Mech.* **448**, 115-146, 2001.
- [11] Boyer F., O. Pouliquen and E. Guazzelli, " Dense suspensions in rotating-rod flows: normal stresses and particle migration," à paraître dans *J. Fluid Mech.*