

# Différences de contraintes normales dans les suspensions non-browniennes concentrées

T. DBOUK, L. LOBRY, E. LEMAIRE

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

## Résumé :

*Nous présentons des expériences réalisées pour tenter de mesurer les différences de contraintes normales dans les suspensions. Celles-ci étant faibles, nous verrons que les méthodes habituellement utilisées en rhéométrie ne sont pas valides. Nous montrons comment nous pouvons déterminer  $\alpha_1+2\alpha_2$  en mesurant le profil radial de la contrainte normale dans la direction du gradient de vitesse, dans un écoulement torsionnel plan/plan.*

## Abstract :

*We present an experimental approach used to measure normal stress differences in non-Brownian suspensions. Our observations illustrate that the methods usually used in classical rheometry are no more valid. We provide the methodology where one can determine  $\alpha_1+2\alpha_2$  by measuring the radial profile of the normal stresses in the direction of velocity gradient of a torsional flow between two parallel disks.*

**Mots clefs :** contraintes normales, suspensions non-browniennes, écoulement torsionnel

## 1 Introduction

La rhéologie de suspensions concentrées de particules sphériques non-browniennes a été l'objet de nombreuses études depuis les années 1970. En particulier, des efforts importants ont été consentis pour tenter de déterminer expérimentalement, numériquement et théoriquement les lois de variation de la viscosité avec le taux de cisaillement et la fraction volumique de particules. Malgré un certain nombre de désaccords qui subsistent entre les différents résultats expérimentaux, un consensus semble avoir émergé, selon lequel les suspensions présentent une légère rhéofluidification et une divergence de la viscosité lorsque la fraction volumique de particules atteint 60% environ. Il a été aussi clairement établi que lorsque la concentration en particules était suffisamment grande, des différences de contraintes normales apparaissaient dans la suspension. Les premiers travaux entrepris par F. Gadala Maria en 1979 ont montré que les différences de contraintes normales (en réalité la différence de la première et de la deuxième différence de contrainte normales,  $N_1-N_2$ ) étaient proportionnelles à la contrainte de cisaillement [1]. Il a ensuite fallu attendre l'an 2000 pour que les deux différences de contraintes normales soient déterminées grâce à l'effet Weissenberg inverse et à la mesure de la force totale exercée sur un cône ou un plan en rotation au-dessus d'un plan immobile [2]. En 2003, Singh et Nott tentèrent également de mesurer  $N_1$  et  $N_2$  en équipant de capteurs de pression une cellule de Couette cylindrique et une cellule d'écoulement torsionnel plan-plan [3]. Enfin, récemment F. Boyer et al. ont mesuré très précisément la variation de  $N_1+2N_2$  avec la fraction volumique de particules en utilisant l'effet Weissenberg [4]. Nous proposons ici de déterminer cette même quantité en mesurant le profil radial de la deuxième contrainte normale (dans la direction du gradient de vitesse) dans un écoulement torsionnel plan-plan [5].

## 2 Détermination des fonctions matérielles en géométrie torsionnelle plan-plan.

### 2.1 Définitions des contraintes normales, conventions

Imaginons la suspension placée entre deux plaques (voir figure 1.a) et soumise à une contrainte de cisaillement  $\Sigma_{12}$ , nous définissons alors sa viscosité,  $\eta_s$ , par le rapport de  $\Sigma_{12}$  sur le taux de cisaillement,  $\dot{\gamma}$ :

$$\eta_s = \frac{\Sigma_{12}}{\dot{\gamma}} \quad (1)$$

En première approximation, ce rapport est constant, même si nous avons noté une légère rhéofluidification.



FIG.1 – Définition de l'écoulement de cisaillement simple. Les directions 1, 2 et 3 représentent respectivement les directions de la vitesse, du gradient de vitesse et de la vorticité. Les normales sont orientées vers l'extérieur de l'élément fluide considéré.

Les contraintes normales sont définies en orientant les normales vers l'extérieur du volume fluide (figure 1.b) et on considère les deux différences de contraintes normales :

$$N_1 = \Sigma_{11} - \Sigma_{22} \quad (2)$$

$$N_2 = \Sigma_{22} - \Sigma_{33}$$

Nous appuyant sur les travaux de Gadala-Maria [1] qui a montré que les différences de contraintes normales étaient proportionnelles à la contrainte de cisaillement, nous définissons les deux coefficients de contraintes normales:

$$\alpha_1 = \frac{N_1}{|\dot{\gamma}|} \quad \text{et} \quad \alpha_2 = \frac{N_2}{|\dot{\gamma}|} \quad (3)$$

## 2.2 Écoulement torsionnel à petit nombre de Reynolds

Considérons l'écoulement de la suspension comprise entre deux disques parallèles de rayon  $R$ , séparés par une distance  $h$ . L'un des disques est immobile tandis que l'autre tourne à une vitesse,  $\Omega$ . Nous ne nous intéresserons qu'au cas où l'écoulement est stationnaire et où l'inertie joue un rôle négligeable:

$$Re = \frac{\rho \Omega R h}{\eta_s} \ll 1 \quad (4)$$

La vitesse est purement orthoradiale et donnée par :

$$v_\theta = \frac{\Omega r}{h} z \quad (5)$$

La projection de l'équation de Stokes sur les axes  $r$  et  $\theta$  s'écrit :

$$\frac{\partial \Sigma_{33}}{\partial r} + \frac{\Sigma_{33} - \Sigma_{11}}{r} = 0 \quad (6.a)$$

$$\frac{\partial \Sigma_{12}}{\partial z} = 0 \quad (6.b)$$

Le taux de cisaillement est déduit de l'équation 6.b:

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega r}{h} \quad (7)$$

L'équation 6.a donne accès à la variation radiale de la deuxième contrainte normale:

$$\frac{\partial \Sigma_{22}}{\partial r} = \dot{\gamma}_R (\alpha_1 + 2\alpha_2) \frac{r}{R} \quad (8)$$

Il est courant de faire l'hypothèse que  $\Sigma_{33}(R)$  est égale à la pression atmosphérique,  $p_a$ , il est alors possible d'obtenir  $\Sigma_{22}(r)$ :

$$\Sigma_{22}(r) = \dot{\gamma}_R \left[ (\alpha_1 + 2\alpha_2) \frac{r}{R} - (\alpha_1 + \alpha_2) \right] + p_a \quad (9)$$

Où  $p_a$  est la pression atmosphérique que nous choisirons comme référence dans la suite ( $p_a=0$ ).

### 2.3 Mesure des différences de contraintes normales

La suspension est placée entre deux disques de rayon  $R=5.5\text{cm}$  et distants de 2 mm, montés sur un rhéomètre Mars à contrainte imposée (Haake, Thermofisher). Le plan inférieur est équipé de huit capteurs de pression relative (STS ATM  $\pm 25$  mbar) (figure 2). Quatre d'entre eux sont des capteurs directs dont la membrane vient affleurer le plan, les quatre autres sont placés derrière des grilles les mailles sont assez serrées pour empêcher les particules de passer. Ces capteurs mesurent alors la pression de pores dans la suspension.

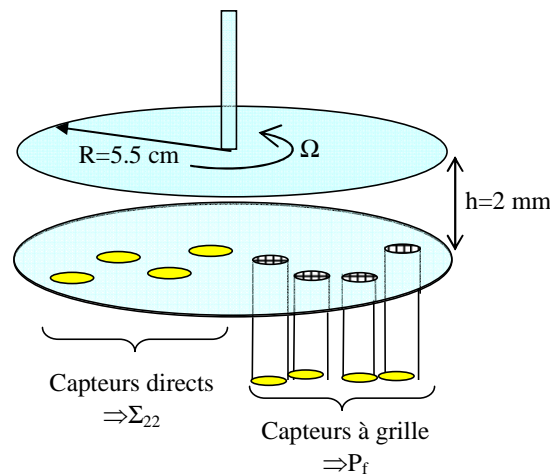


FIG.2 – Schéma de principe de l'expérience

Les capteurs directs nous permettent de mesurer le profil radial de la seconde contrainte normale à partir duquel nous pouvons espérer déduire  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$ :

$$\begin{aligned} \alpha_1 + 2\alpha_2 &= \frac{R}{\dot{\gamma}_R} \frac{\partial \Sigma_{22}}{\partial r} \\ \alpha_1 + \alpha_2 &= \frac{p_a - \Sigma_{22}(0)}{\dot{\gamma}_R} \end{aligned} \quad (10)$$

En réalité, nous verrons dans la suite que la deuxième relation de l'équation (10) n'est pas valide. On ne peut en effet pas faire l'hypothèse  $\Sigma_{33}(R)=p_a=0$  car la forme de l'interface air/suspension est déformée par l'écoulement et le changement de courbure induit une pression capillaire qu'il est impossible de négliger. Un ordre de grandeur de la pression capillaire est donné par  $p_c = \gamma/r_c \sim 50$  Pa où  $\gamma$  est la tension interfaciale et  $1/r_c \sim 2/h = 10^3 \text{ m}^{-1}$  est la différence de courbure de l'interface induite par l'écoulement. Cet ordre de grandeur de la pression capillaire est tout à fait comparable aux valeurs de  $\Sigma_{22}$  que nous mesurons. Ainsi, nos mesures ne nous donnent accès qu'à une combinaison de coefficients de contraintes normales :  $\alpha_1 + 2\alpha_2$ . Notons que dans le cas des polymères, il est courant de mesurer  $N_1 - N_2$  à partir de la force totale exercée sur l'un des disques et que l'on fait dans ce cas l'hypothèse  $\Sigma_{33}(R)=p_a$ . Cette méthode ne peut pas être utilisée dans le cas des suspensions où l'on s'attend à mesurer des différences de contraintes normales beaucoup plus faibles que dans le cas des polymères.

### 3 Expériences

#### 3.1 Validation du dispositif expérimental.

Les études précédentes menées sur les différences de contraintes normales dans les suspensions montrent qu'elles sont du même ordre de grandeur que les contraintes de cisaillement,  $\Sigma_{12}$ . Il est alors légitime de s'interroger sur l'impact que pourrait avoir les défauts de parallélisme sur les pressions que nous mesurons. En effet, dans l'approximation de la lubrification, un défaut de parallélisme de  $\delta h$  sur une longueur caractéristique  $R$  induit une différence de pression de l'ordre :

$$\delta p = 2\eta\Omega R^2 \frac{\delta h}{h^3} = 2\Sigma_{12} \frac{\delta h R}{h^2} \quad (11)$$

Dans notre expérience, on évalue  $\delta h \approx 50 \mu\text{m}$ ,  $R = 5.5 \text{ cm}$  et  $h = 2 \text{ mm}$  ce qui conduit à  $\delta p \approx \Sigma_{12}$ .

$\delta P$  change de signe avec la vitesse. Par conséquent, pour faire abstraction de ce terme de lubrification, nous mesurons  $\Sigma_{22}$  en faisant tourner le plan supérieur dans un sens et dans l'autre et nous faisons la moyenne des deux valeurs enregistrées. Les pressions sont également moyennées sur au moins une révolution. Par ailleurs, un soin particulier est pris pour que les membranes des capteurs soient placées exactement au même niveau que le plan.

Le dispositif expérimental est alors testé en mesurant la pression d'origine inertielle attendue dans un fluide simple cisailé entre deux disques rotatifs:

$$p_i = 0.15\rho\Omega^2 (r^2 - R^2) \quad (12)$$

Où  $\rho = 1.05 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$  est la masse volumique du fluide. La figure 3 montre un accord satisfaisant entre les pressions mesurées et les pressions attendues (eq.12).

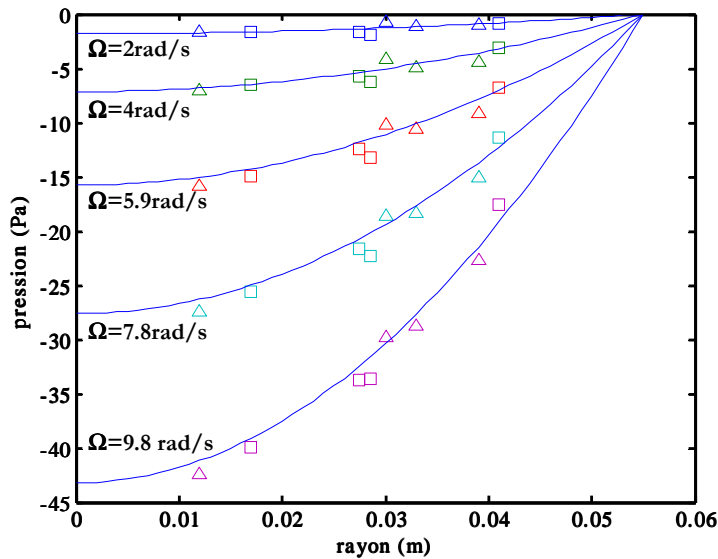


FIG.3 – Pression inertielle mesurée par les capteurs directs ( $\Delta$ ) et les capteurs à grille ( $\square$ ) et calculée à partir de l'expression (12)

#### 3.2 Suspensions

Les suspensions que nous avons étudiées sont constituées de particules de polystyrène monodisperses de diamètre  $140 \mu\text{m}$  (TS 140, Microbeads) dispersées dans des mélanges d'eau, d'huile Ucon 75H90000 (Dow) ( $\rho = 1.09 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ ,  $\eta = 30 \text{ Pa.s.}$ ) et de bromure de zinc. Les mélanges sont réalisés de façon à ce que la densité du fluide soit la même que celle des particules ( $\rho = 1.05 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ ) et que la viscosité puisse varier de quelques dizaines à quelques centaines de centipoises. La fraction volumique de particules varie entre 25 et 50%.

### 4 Résultats

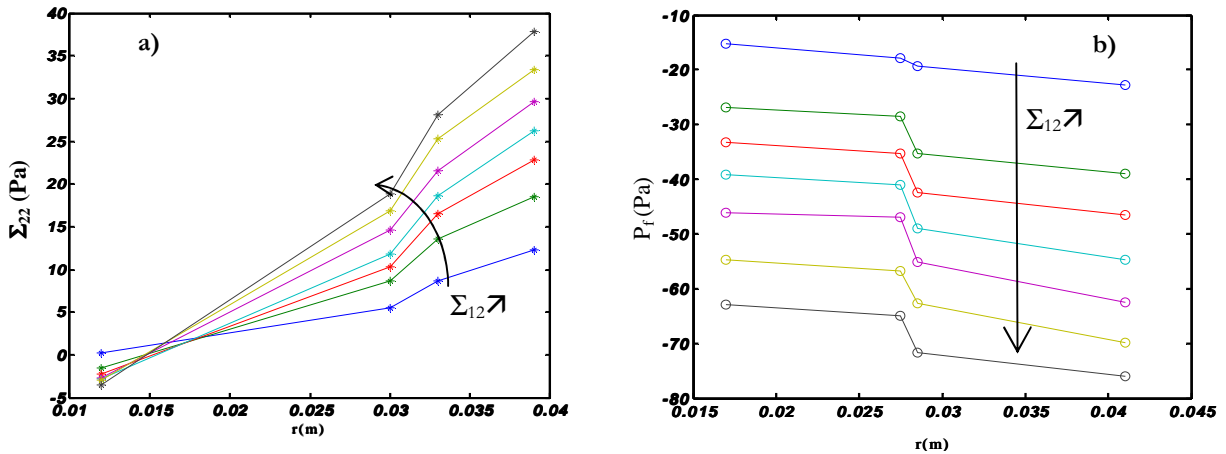


FIG. 4 – mesure de la deuxième contrainte normale (a) et de la pression de pores dans une suspension contenant 49% de particules dispersées dans un fluide de viscosité  $\eta_1=143$  cP, pour différentes contraintes de cisaillement ( $\Sigma_{12}(R)= 32, 53, 63, 74, 85, 95$  et  $106$  Pa).

La figure 4.a présente la variation de la pression mesurée sur les capteurs directs ( $\Sigma_{22}$ ) tandis que la figure 4.b présente la variation de la pression de pores enregistrée par les capteurs à grille. Ces résultats ont été obtenus avec une suspension contenant 49% de particules dispersées dans un fluide de viscosité 143 cP.

Malgré une dispersion assez importante des résultats, on peut voir que, comme attendu,  $\Sigma_{22}$  varie linéairement avec le rayon. La figure 5 montre que la variation de  $\frac{\partial \Sigma_{22}}{\partial r}$  avec  $\Omega$  est également linéaire. On peut donc, d'après l'expression (10) déduire la valeur de  $\alpha_1+2\alpha_2$ .

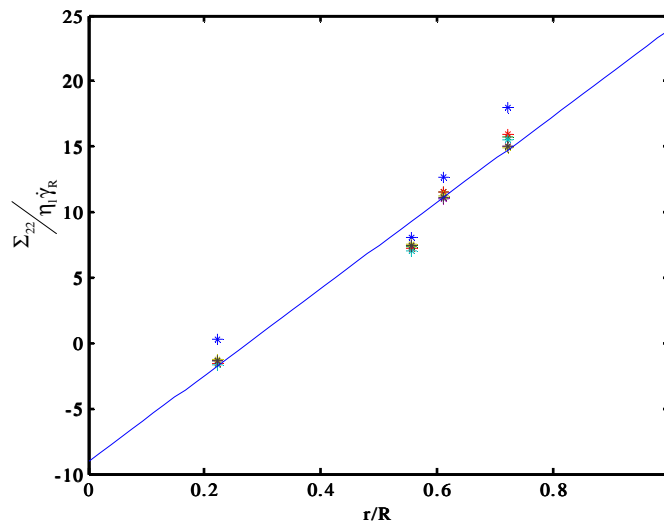


FIG.5 - Contrainte normale dans la direction du gradient de vitesse, normalisée par le produit de la viscosité du fluide suspendant par le taux de cisaillement au bord. La pente de cette droite donne accès à la combinaison de coefficients de contraintes normales recherchée:  $(\alpha_1+2\alpha_2)/\eta_1$ .

L'expérience est conduite pour différentes fractions volumiques ce qui nous permet d'obtenir la variation de  $(\alpha_1+2\alpha_2)/\eta_1$  en fonction de  $\phi$ , (figure 6). Ajoutons que nous avons vérifié, en changeant de fluide suspêndant, que le rapport  $(\alpha_1+2\alpha_2)/\eta_1$  était bien indépendant de la valeur de  $\eta_1$ .

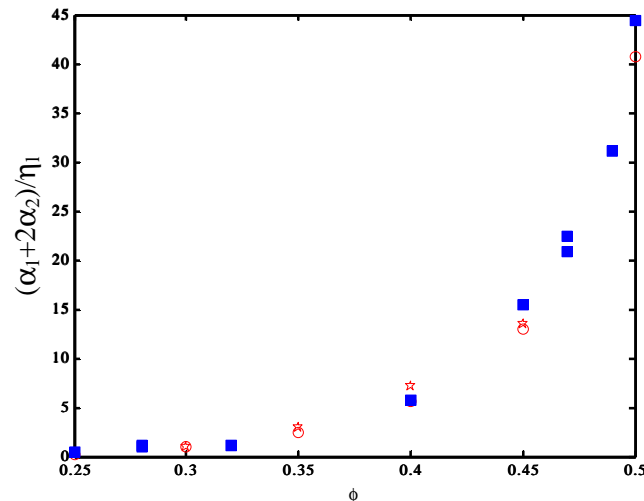


FIG.6 – variation de  $(\alpha_1+2\alpha_2)/\eta_1$  en fonction de la fraction volumique (■) comparé aux mesures de Singh et Nott (★) et de Boyer et al.(○). (Notons que Boyer et al. donne la valeur de  $\alpha_1+2\alpha_2$  normalisée par la viscosité de la suspension. Pour comparer leurs résultats aux nôtres, nous avons supposé que la viscosité de

leur suspension variait comme la nôtre avec la fraction volumique, à savoir  $\eta_s = \left(1 - \frac{\phi}{0.58}\right)^{-2}$

## 5 Conclusion

En mesurant le profil radial de la deuxième contrainte normale, nous avons été en mesure de déterminer une combinaison de coefficients de contraintes normales. Compte tenu des faibles contraintes normales attendues (de l'ordre de la pression capillaire) nous avons été dans l'impossibilité de déterminer une seconde combinaison de  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$ . Nous projetons de le faire en utilisant une géométrie de Poiseuille annulaire qui permet une mesure directe de  $\alpha_2$  [5].

## References

- [1] Gadala-Maria, F., The rheology of concentrated suspensions, Ph.D. thesis, Stanford University, 1979.
- [2] Zarraga I.E., D. A. Hill and D. T. Leighton., The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids, *J. Rheol.***44**, 185-220, 2000.
- [3] Singh A., Nott P. R., Experimental measurements of the normal stresses in sheared Stokesian suspensions, *J. Fluid Mech.* **490**, 293–320, 2003.
- [4] Boyer F., Pouliquen O., E. Guazzelli, " Dense suspensions in rotating-rod flows: normal stresses and particle migration," à paraître dans *J. Fluid Mech.*
- [5] Bird R. B., Armstrong R. C., Hassager O., Dynamics of polymeric liquids, vol.1 Fluid Mechanics, vol.2 Kinetic Theory, Copyright © John Wiley & sons, Inc. (1987).