

Approche micromécanique du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil

Thi Thuy Linh Nguyen

▶ To cite this version:

Thi Thuy Linh Nguyen. Approche micromécanique du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil. Matériaux. Université Paris-Est, 2015. Français. <NNT : 2015PESC1092>. <tel-01318867>

HAL Id: tel-01318867 https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01318867

Submitted on 20 May 2016

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

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



THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE

L'UNIVERSITÉ PARIS-EST

Spécialité : Matériaux et Structures

Présentée par :

Thi Thuy Linh NGUYEN

Sujet de la thèse :

Approche micromécanique du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil

Soutenue à Champs sur Marne le 07 Octobre 2015 devant le jury composé de :

М.	Christophe	LANOS	Président - Examinateur
М.	Guillaume	OVARLEZ	Rapporteur
М.	Rudy	VALETTE	Rapporteur
Mme.	Julie	GOYON-TROHAY	Co-encadrante de thèse
М.	Xavier	CHATEAU	Directeur de thèse

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein de l'équipe Rhéophysique du laboratoire Navier de l'Ecole des Ponts ParisTech à l'Université Paris-Est. Je souhaite en premier lieu adresser toute ma reconnaissance à mon directeur de thèse Monsieur Xavier CHATEAU pour m'avoir dirigé durant ce travail, pour sa disponibilité, sa patience et sa gentillesse tout au long de la thèse. C'est lui qui m'avoir toujours apporté les explications scientifiques précises et claires de la micromécanique. Ses grandes connaissances scientifiques et pédagogie avec ses encouragements pendant toutes ces années m'ont permis de mener finalement au sujet abordé dans ce mémoire.

Je tiens à remercier profondément Madame Julie GOYON-TROHAY, mon co-encadrante de thèse, de m'avoir apporté beaucoup de connaissances du côté expérimental de la thèse et pour sa gentillesse et son soutien envers moi.

Je tiens à remercier chaleureusement les membres de jury d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse. J'adresse toute ma gratitude à Monsieur Christophe LANOS, Professeur des Universités à IUT Rennes de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse . Je remercie particulièrement Monsieur Guillaume OVARLEZ, Directeur de Recherche CNRS à LOF, l'Université de Bordeaux et Monsieur Rudy VALETTE, Maître de Conférence à l'Ecole des Mines ParisTech d'avoir accepté de rapporter mon mémoire de thèse.

Je souhaite adresser toute ma gratitude à Monsieur François CHEVOIR, le Directeur Adjoint du laboratoire Navier pour m'avoir accueilli dans un environnement de travail dynamique.

Je tiens à remercier l'equipe Technique Tranversal du laboratoire, particulièrement Monsieur Pascal MOUCHERONT et Cédric MEZIER qui ont élaboré le dispositif expérimental au cours de la thèse.

Je souhaite remercier Nathalie CHERER, Sandrine COQUERET, Carmen SANCHEZ et Yves LE FLOCH pour leurs aides efficaces durant ma thèse.

Mes remerciements vont également à Lucie DUCLOUE, de m'avoir fourni ses résultats expérimentaux pour que nous puissions valider les modèles micromécaniques, pour sa sympathie, sa bonne humeur et pour les intéressés cours français-vietnamien que nous avons échangé pendant les petites pauses au bureau. Je remercie sincèrement Jennifer FUSIER pour sa gentillesse et ses corrections d'orthographes sur ma rédaction de thèse. J'adresse également mes remerciements à tous les chercheurs, thésards et post doc du site Kepler qui ont fait le quotidien de mes années de thèse.

Enfin, je tiens à remercier infiniment mes parents et ma sœur qui m'ont toujours soutenu pendant mes années d'études. Et merci à ma petite famille : à mon mari et à ma petite fille pour leur patience, leur compréhension et le bonheur qu'ils m'apportent.

Résumé

Cette thèse est une contribution à la modélisation du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide non newtonien du type fluide à seuil.

Elle comprend trois parties. La première partie est une étude bibliographique recensant les travaux théoriques et expérimentaux pour des bulles cisaillées dans un matériau newtonien. La seconde partie est consacrée à l'étude expérimentale de cisaillement simple d'une bulle suspendue dans un fluide à seuil. La dernière partie présente une approche par changement d'échelle du comportement macroscopique d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil.

Pour le travail expérimental, nous avons développé un premier prototype de dispositif permettant de cisailler d'une bulle suspendue dans un fluide à seuil. Pour cela, une bulle d'air est injectée au sein d'un grand volume de Carbopol cisaillé loin de la bulle par un dispositif à bandes parallèles. Une première série d'essais a permis de montrer l'efficacité du dispositif et d'obtenir quelques résultats sur la déformabilité d'une bulle cisaillée par un fluide à seuil.

Pour le travail théorique, d'abord nous avons proposé des estimations du comportement de la suspension dans le cas des schémas dilué, Mori-Tanaka, autocohérent et motifs morphologiques. Ces modèles nous ont permis de trouver que dans le régime élastique le module élastique macroscopique de la suspension dépend du nombre capillaire Ca_{elast} défini comme le rapport entre le module de cisaillement du fluide porteur et la pression capillaire de la bulle. Ensuite en utilisant une méthode d'homogénéisation sécante modifiée (Suquet 1997), nous avons estimé des caracté-ristiques non linéaires globales de la suspension. Le modèle prédit que le seuil d'écoulement de la suspension est égal au seuil d'écoulement du fluide porteur quelle que soit la taille des bulles. La validation de ces modèles micromécanique a été réalisée par comparaison aux résultats expérimentaux obtenus au laboratoire (Ducloué 2014).

Mots clés : suspension de bulles, fluide à seuil, rhéologie, nombre capillaire, approche par changement d'échelle.

Abstract

This thesis contributes to characterizing the behavior of a suspension of bubbles dispersed in a non-Newtonian fluid (yield stress fluid type).

It consists of three parts. The first part is a literature review identifying the theoretical and experimental works for bubbles sheared in a Newtonian material. The second part is dedicated to the experimental study of the simple shear of a bubble suspended in a yield stress fluid. The last part consists in developing an upscaling approach to study the macroscopic behavior of a suspension of bubbles in a yield stress fluid.

For experimental work, we developped a first prototype of device for the study of the shearing of a bubble in a yield stress fluid. For that purpose, an air bubble is injected in a big volume of Carbopol sheared far from the bubble by a system in two parallel bands. A first series of tests allowed to show the efficiency of the device and to obtain some results on the deformability of a sheared bubble in a yield stress fluid.

For theoretical work, first we proposed estimates of the behavior of the suspension in the case of diluted scheme, Mori-Tanaka, autocoherent and morphological patterns. These models have allowed us to find that in the elastic regime the macroscopic elastic modulus of the suspension depends on the capillary number Caelast defined as the ratio of the shear modulus of the fluid suspended over the capillary pressure of the bubble. Then using a modified secant homogenization method (Suquet 1997), we estimated the overall nonlinear properties of the suspension. The model predicts that the overall yield stress of the suspension is that of the suspending fluid regardless of the size of bubbles. The validation of these micromechanical models was achieved thanks to the experimental results obtained in the laboratory (Ducloué 2014).

Keywords : bubbles suspensions, yield stress fluid, rheology, capillary number, upscaling approach.

Table des matières

1	Intr	oduction	n généralo	e	19
2	Etuc	le biblic	ographiqu	16	21
	2.1	Contex	te de l'étu	ıde	21
	2.2	Suspen	sion de bu	ulles dans un matériau homogène	25
	2.3	Résulta	ats expérir	nentaux	26
	2.4	Problè	me d'inclu	usion équivalente de Palierne	33
			2.4.0.1	Problème pour une inclusion unique	33
			2.4.0.2	Emulsion monodisperse diluée	34
			2.4.0.3	Inclusions de tailles différentes	34
			2.4.0.4	Inclusions aux caractéristiques hétérogènes	35
	2.5	Métho	de sécante	modifiée	36
	2.6	Etude of	du cisaille	ment d'une bulle dans un fluide	37
			2.6.0.5	Etude de Taylor [62]	37
			2.6.0.6	Etude numérique de Cox [24]	40
			2.6.0.7	Etude de Rallison [52]	41
			2.6.0.8	Etude de Rust et Manga [54]	42
			2.6.0.9	Récapitulatif	44
3	Cisa	illemen	t d'une bi	ulle suspendue dans un fluide à seuil	47
-	3.1	Matéri	au modèle	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	47
		3.1.1	Générali	té sur les fluides à seuil	47
		3.1.2	Ouelque	s comportements particuliers	48
			3.1.2.1	Les fluides thixotropes	48
			3.1.2.2	Emulsion floculée	48
		3.1.3	Formulat	tion de fluide à seuil modèle	49
			3.1.3.1	Solution de Carbopol	49
			3.1.3.2	Emulsion	49
		3.1.4	Méthode	e de préparation	50
			3.1.4.1	Solution de Carbopol	50
			3.1.4.2	Emulsion directe transparente	50
		3.1.5	Caractéri	isation des matériaux modèles	53
			3.1.5.1	Granulométrie	53

			3.1.5.2 Rhéologie	5
	3.2	Choix	du dispositif expérimental	0
		3.2.1	Dispositif de cisaillement à « quatre rouleaux » 6	1
		3.2.2	Dispositif de cisaillement à « bandes parallèles » 6	1
		3.2.3	Dispositif de cisaillement « plan-plan »	2
		3.2.4	Dispositif de cisaillement « cellule de Couette »	3
		3.2.5	Conclusion	4
	3.3	Dispos	sitif	5
		3.3.1	Principe	5
		3.3.2	Mise au point	5
		3.3.3	Procédure expérimentale	6
		3.3.4	Résultats expérimentaux	8
4	Hom	ngénéig	sation 7	3
-	4 1	Rulle s	nhérique dans un milieu infini	3
	7.1	4 1 1	Chargement en compression isotrope 7	5
		412	Chargement en cisaillement nur 7	7
	42	Homos	pénéisation	1
		4.2.1	Approche générale	2
		4.2.2	Schéma dilué	5
		4.2.3	Schéma de Mori-Tanaka	7
		4.2.4	Schéma autocohérent	0
		4.2.5	Approche par motif morphologique	1
			4.2.5.1 Chargement en compression isotrope	3
			4.2.5.2 Chargement en cisaillement pur	4
			4.2.5.3 Résolution de l'approche par motif morphologique 9	7
	4.3	Homog	généisation non linéaire	8
		4.3.1	Suspension de bulles très déformables/non déformables dans un fluide	
			de Herschel-Bulkley	9
			4.3.1.1 Application au schéma dilué	1
			4.3.1.2 Application au schéma de Mori-Tanaka	1
	4.4	Validat	tion expérimentale	2
		4.4.1	Module élastique de la suspension	2
		4.4.2	Contrainte seuil de la suspension	5
5	Con	clusion	10	9

Liste des symboles

<u>x</u>	tenseur d'ordre un
x	tenseur d'ordre deux
X	tenseur d'ordre quatre
\otimes	produit tensoriel
\cdot ou :	produit contracté d'ordre un ou deux
grad	opérateur gradient
tr	trace d'un tenseur
div	opérateur divergence
$\langle \cdot \rangle_i$	moyenne sur une phase i
ξ	déplacement
$\overline{\varepsilon}, E$	déformation linéarisée
σ, Σ	contrainte de Cauchy
d	tenseur des taux de déformations eulériens
\mathbb{C}	tenseur d'élasticité
σ	tension de surface
a	rayon de la bulle
R	rayon des inclusions
φ	fraction volumique en bulles
φ_h	fraction volumique en huile
ρ	densité du fluide
Γ	couple
Ω	vitesse angulaire de rotation
h	entrefer
$\dot{\gamma}$	taux de cisaillement
G	module élastique
G"	module visqueux
k	module de compressibilité
k_g	cœfficient de compressibilité du gaz
$ au_c$	contrainte seuil
η	consistance (Herschel-Bulkley)

μ	viscosité
n	indice plastique
Ca	nombre capillaire ($Ca = \frac{\mu\sigma}{a}$)
Ca_{elast}	nombre capillaire élastique ($Ca_{elast} = \frac{G}{\sigma/a}$)
Ca_{plas}	nombre capillaire plastique ($Ca_{plas} = \frac{\tau_c}{\sigma/a}$)
Re	nombre de Reynold
hom	homogénéisé
sct	sécant
eff	effectif
l	liquide
eq	équivalent
b	bulle
i	inclusion
т	matrice
VER	Volume Elémentaire Représentatif
DL	schéma dilué
MT	schéma de Mori-Tanaka
AC	schéma autocohérent

Table des figures

2.1	Comportement sous le seuil de contrainte (à gauche) et au dessus du seuil de	
	contrainte (à droite) d'une émulsion modèle (figure extraite de [29])	27
2.2	Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles	
	pour différentes valeurs du nombre capillaire élastique	28
2.3	Contrainte seuil adimensionnée en fonction de la fraction volumique en bulles	
	pour différentes tailles de bulles et différentes valeurs de la tension de surface	30
2.4	Rapport d'aspect de gouttes de liquide déformées dans un gel de silicone mou en	
	fonction de leur taille et des déformations appliquées. a) Rapport d'aspect de 8	
	gouttes de taille différente en fonction de la déformation appliquée. b) Evolution	
	du rapport d'aspect en fonction de la taille pour plusieurs valeurs de la défor-	
	mation. Figures extraites de [58]. Pour tous les systèmes la tension de surface	
	liquide-matrice vaut $0,0036Nm^{-1}$	31
2.5	Module de Young du matériau composite en fonction de la fraction volumique	
	en liquide pour deux matrices différentes. a) matrice de module de Young égal à	
	105kPa. b) matrice de module de Young égal à $3kPa$. Pour les deux figures, la	22
•	courbe représente les prédictions du modèle dit d'Eshelby. Figure tirée de [58].	32
2.6	A gauche : lignes de courant générées par appareil à quatre rouleaux créant un	
	écoulement purement élongationnel, d'après Tretheway et Leal [64]. A droite :	
	dispositif du type « bandes paralleles » de cisaillement simple d'une bulle dans	20
27	Un fluide newtonien. D'après l'aylor [62].	38
2.7	Parametres geometriques caracterisant la forme et l'orientation d'une goutte sou-	20
20	Exemple de variation de D en fanation de Ca dens un écoulement de significantes	39
2.8	Exemple de variation de D en fonction de Ca dans un écoulement de cisaliement	20
2.0	Simple pour $\lambda = 20$. D'après Taylor [62] d'après Puet et Mange	39
2.9	Dispositif de cisamement du type « Bandes Paraneies », d'après Rust et Manga	12
2 10	[J4]	43
2.10	Farametre de deformation administronne, $D = (L - D)/(L + D)$ en fonction du nombre capillaire pour des bulles soumises à un écoulement en cisaillement	
	simple avec $\lambda \ll 1$ et $Be \ll 1$. La taille de chaque cercle est proportionnelle à	
	celle de la bulle quand elle n'est pas encore déformée (0.88 < $a < 2.55mm$)	
	La courbe en trait plein est l'estimation théorique en petites déformations [62].	
	La courbe en pointillés est donnée par la relation (2.52) de Hinch et Acrivos [35].	
	D'après Rust et Manga [54]. \ldots	44
		-

2.11	Orientation stable des bulles soumises à un écoulement en cisaillement simple décrite par une relation entre Ca et θ . Le trait plein et la courbe sont des relations théoriques (2.51) de Hinch et Acrivos pour $\theta(Ca)$ à faibles et fortes déforma-	4.5
	tions. D'après Rust et Manga [54].	45
3.1 3.2	Schéma de l'émulsificateur Couette, d'après la référence [43] Effet de la fraction volumique en huile sur la distribution granulométrique d'une émulsion toutes les émulsions ent été sissillées à i_{10} = 10650 s ⁻¹	51
3.3	Effet du cisaillement sur la distribution granulométrique d'une émulsion à frac- tion volumique constante (87 %).	54
3.4	Reproductibilité de la préparation des émulsions : deux émulsions de même frac- tion volumique en huile (87 %) et même taux de cisaillement ($\dot{\gamma} = 14200 \text{ s}^{-1}$)	
3.5	obtenues à partir de deux prémélanges différents.Géométrie plan-plan.	56 57
3.6	Exemple de module élastique et module visqueux d'une émulsion contenant 87% d'huile	58
3.7 3.8	Exemple de contrainte seuil mesurée sur une émulsion contenant 91 % d'huile. Différents comportement rhéologiques : (1) fluide newtonien, (2) fluide rhéoé-	58
	paississant, (3) fluide rhéofluidifiant, (4) fluide de Bingham ou (5) fluide de Herschel-Bulkley avec $n < 1$.	59
3.9	Exemple de courbe d'écoulement du Carbopol.	60
3.10 3.11	Dispositif de cisaillement à « quatre rouleaux », d'après Taylor [62] Dispositif de cisaillement à « bandes parallèles », d'après la référence [54], a)	61
	Vue latérale, b) Vue de dessus.	62
3.12	Dispositif de cisaillement « plan-plan », d'après la référence [3].	63
3.13	Exemple d'un dispositif de cisaillement « cellule de Couette », d'après la réfé- rence [10]	64
3.14	(a) Dispositif de cisaillement d'une bulle dans un fluide fabriqué au laboratoire ;(b) Image d'une bulle déformée sous un cisaillement simple dans une expérience	
	au laboratoire	66
3.15	Quelques éléments du dispositif à « Bandes Parallèles » fabriqué au laboratoire.	67
3.16	(a) Image prise par la caméra; (b) Image traitée par le logiciel ImageJ d'une bulle de 20 <i>u</i> l	67
3.17	(a) Reproductibilité de l'orientation θ de la bulle en fonction du temps pour trois bulles de rayon 1,68 mm; (b) Reproductibilité du paramètre de déformation adi- mensionné, $D = (L - B)/(L + B)$ en fonction du temps pour trois bulles de rayon 1,68 mm. Chaque bulle est cisaillée à 0,25 s ⁻¹ dans un carbopol dont le seuil est 21 Pe	70
3.18	Relation entre les paramètres de déformation de la bulle et le nombre capillaire : (a) $\theta(Ca)$; (b) $D(Ca)$.	70
4.1	Estimation diluée du module de cisaillement adimensionné en fonction de la	
	concentration en bulles	87

4.2	Estimation de Mori-Tanaka du module de cisaillement adimensionné en fonction	
	de la concentration en bulles	. 89
4.3	Estimation du module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction	
	volumique en bulles pour une suspension isotrope de bulles monodisperses pour	
	$Ca_{elast} = 0 \ (f = 0, 6) \ \text{et} \ Ca_{elast} \rightarrow \infty \ (f = 0, 6). \ \dots \ $. 96
4.4	Estimation du module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction	
	volumique en bulles pour une suspension isotrope de bulles monodisperses pour	07
4.5	$Ca_{elast} = 0, 4 \ (f = 0, 6) \text{ et } Ca_{elast} = 0, 7 \ (f = 0, 6).$. 97
4.5	Definition du module secant d'un fluide isotrope incompressible. Figure tiree de	00
16	[19]	. 99
4.0	Module elastique adimensionne en lonction de la fraction volumique en bulles. Pouga : prédiction pour $C_{a} \rightarrow 0$ poir : prédiction pour $C_{a} \rightarrow \infty$ disques	
	Rouge : prediction pour $Ca \rightarrow 0$, non : prediction pour $Ca \rightarrow \infty$, disques	
	bulles de 1000 μ m - TTAB	102
47	(a) (b) (c) Comparaison entre le module de cisaillement adimensionné en fonc-	. 102
1.7	tion de la fraction volumique en bulles estimé dans le schéma de Mori-Tanaka	
	(en trait plein sur les graphes) et les valeurs expérimentales des suspensions me-	
	surées par Lucie Ducloué [29] : (a) Influence du rayon des bulles ; (b) Influence	
	du module élastique de l'émulsion interstitielle; (c) Influence de la tension de	
	surface ; (d) Comparaison entre module élastique estimé pour le schéma de Mori-	
	Tanaka et module élastique mesuré sur 8 suspensions faites par Lucie Ducloué	
	[29]. La ligne noir est le tracée de la fonction $y = x$. 103
4.8	Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles	
	pour des suspensions de bulles de 50 μ m dans l'émulsion 4a et de 150 μ m dans	
	l'émulsion 4b. Les courbes en trait plein sont les estimations du module élastique	
	adimensionné de Mori-Tanaka. Données expérimentales d'après Lucie Ducloué	104
4.0		. 104
4.9	Système à grands nombres capillaires : module de cisaillement adimensionne en	
	Tonction de la fraction volumique en bulles. Courbe marron : estimation de Mon- Tanaka pour C_{a} $\rightarrow \infty$ Losanges blaus plains : bulles de 1000 μ m Losanges	
	ranaka pour $Cu \rightarrow \infty$. Losanges bieus pienis : bulles de 1000 μ m. Losanges verts : bulles de 150 μ m. Données expérimentales d'après Lucie Ducloué [20]	105
<i>A</i> 10	Seuil de contrainte adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulle	. 105
7.10	Courbe marron : estimation de Mori-Tanaka pour $Ca \rightarrow 0$ Les points expéri-	
	mentaux sont mesurés pour 7 systèmes d'émulsions étudiées par Lucie Ducloué	
	[29]	. 106
4.11	Seuil de contrainte adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulle.	
	Courbe rouge : estimation de Mori-Tanaka pour $Ca \rightarrow \infty$. Losanges bleus :	
	bulles de 1000 μ m. Les valeurs mesurées sur les autres systèmes d'émulsions	
	sont rappelées pour comparaison. Données d'après Lucie Ducloué [29]	. 107

Liste des tableaux

2.1	Récapitulatif des différentes formulations utilisées par Lucie Ducloué pour pro- duire des suspensions de bulles modèles (extrait de [29]).	29
2.2	Récapitulatif des déformation et orientation de la bulle soumise à un cisaillement simple	45
3.1	Récapitulatif des différentes émulsions préparées.	52
3.2	Récapitulatif des solutions de Carbopol utilisées.	53
3.3	Récapitulatif des différentes bulles cisaillées dans du carbopol	69

Chapitre 1 Introduction générale

Les matériaux aérés (situation où des bulles de gaz sont incorporées ou emprisonnées dans un matériau) sont présents lors d'un certain nombre de processus industriels. L'incorporation de ces bulles d'air crée de nouveaux matériaux qui permettent d'améliorer leurs propriétés d'usage : diminuer la densité, renforcer l'isolation acoustique et thermique, comme dans les cas des bétons de façade aérés et les plaques de placoplâtre par exemple. Au contraire, il est aussi possible d'obtenir des caractéristiques non souhaitées du matériau : engendrer des zones mécaniquement fragiles, comme lors de la mise en œuvre des bétons frais. De nombreuses recherches ont été menées dans la situation où la fraction volumique en gaz est très importante (mousses [15]). Par contre les suspensions de bulles, situation où la phase gazeuse occupe des domaines disjoints entourés d'une matrice de fluide, n'ont pas été beaucoup étudiées. L'objectif de cette thèse est de développer des outils de modélisation du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil et de comparer ces prédictions avec les résultats expérimentaux obtenus notamment par Lucie Ducloué [29] au cours de son travail de thèse mené au laboratoire Navier.

Le premier chapitre de ce manuscrit est une étude bibliographie recensant les travaux théoriques et expérimentaux pour des bulles cisaillées dans un matériau newtonien. Pour cela, nous présenterons d'abord le contexte scientifique de cette étude. Ensuite nous nous intéresserons aux travaux sur le comportement des suspensions de bulles dans un matériau homogène. Puis nous aborderons les résultats expérimentaux de Ducloué [29] et de Dufresne ([59], [58]) qui serviront de référence pour valider les prédictions des modèles de l'approche micro-mécanique de cette thèse. Dans la partie suivante, nous parlerons de la solution établie par Palierne pour le problème d'une goutte avec tension de surface suspendue dans un matériau homogène linéaire cisaillé à l'infini qui nous permettra de généraliser les approches « classiques » de l'homogénéisation des matériaux hétérogènes. Nous présenterons ensuite la méthode d'homogénéisation sécante modifiée de Suquet [60] qui sera employée pour le calcul d'homogénéisation non linéaire dans la thèse. Enfin nous rappelerons les résultats sur le cisaillement d'une bulle dans un fluide ([62], [24], [52], [54]). Cette dernièe partie nous permettra d'établir un bilan des connaissances sur la déformation et la rupture d'une bulle ou d'une goutte cisaillée dans un fluide newtonien.

Le second chapitre de cette thèse est consacré à l'étude du cisaillement d'une bulle suspendue dans un fluide à seuil. L'étude d'une bulle unique est indispensable à la compréhension des phénomènes qui ont lieu à l'échelle macroscopique dans un matériau aéré. Nous présenterons tout d'abord le choix et la caractérisation des matériaux modèles (fluide à seuil). Ensuite, nous identifierons dans la littérature les différents dispositifs expérimentaux permettant de cisailler une bulle dans un fluide (dispositifs de Taylor [62], de Rust et Manga [54], de Assighaou et Benyahia [4] et de Blaj et al. [10]). La plupart de ces expériences ont été réalisées dans un fluide newtonien visqueux. En comparant ces dispositif, nous avons retenu le système à deux bandes parallèles comme étant le plus adapté à nos études. La suite du chapitre présentera le principe de fabrication et la mise au point du dispositif permettant de cisailler une bulle dans un fluide à seuil. La procédure expérimentale et les résultats seront présentés à la fin du chapitre.

Dans la troisième partie, nous développons une approche par changement d'échelle pour étudier le comportement macroscopique d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil. Nous détaillons dans un premier temps la solution d'Eshelby généralisée avec prise en compte des effets de tension superficielle. Cette solution nous a permis de proposer des estimations des propriétées globales du matériau étudié en utilisant les schémas d'homogénéisation linéaire classiques, à savoir le schéma dilué, le schéma de Mori-Tanaka et le schéma autocohérent. Ces estimations prennent en compte la concentration en bulles, la polydispersité et les caractéristiques de la suspension (tension de surface, rayon de bulles, module élastique du fluide porteur). Cependant elle ne permettent pas de prédire les caractéristiques d'une suspension concentrée de bulles. Nous avons donc mis en oeuvre une approche par motifs morphologiques représentatif pour améliorer la description des interactions entre bulles pour des fortes concentrations en bulles. Cette approche permet une meilleure prise en compte de la localisation des déformations à l'approche du seuil de percolation au sein de la suspension. Ensuite, en utilisant une méthode d'homogénéisation sécante modifiée [60], nous avons proposé des estimations des caractéristiques non linéaires globales de la suspension. Cette partie se termine par une comparaison entre la modélisation micromécanique et les tendances expérimentales observées au laboratoire.

La quatrième partie de thèse a pour objet de présenter les conclusions générales que nous avons retirées de ce travail.

Chapitre 2 Etude bibliographique

Ce chapitre a pour objet de présenter la problèmatique de cette thèse. Dans une première partie nous présentons le contexte scientifique de cette étude. Différents modélisations de suspensions existant dans la littérature, qui permettent de prédire leurs caractéristiques macroscopiques, seront abordés dans cette partie. Ensuite nous présentons le problème de suspension de bulles dans un matériau homogène et les résultats expérimentaux de Lucie Ducloué [29] et de Dufresne [58], [59]. Ces résultats seront utilisés pour comparer avec les résultats de l'approche micro-mécanique présentée dans le chapitre 4. La suite de ce chapitre est consacrée au problème d'inclusion équivalente proposé par Palierne [50] qui sert à estimer les propriétés élastiques globales de suspensions dans les schémas d'homogénéisation. Ensuite, nous présentons la méthode sécante modifiée proposée par Suquet [60] qui sera employée dans la partie de calcul non linéaire de ce travail. La dernière de ce chapitre est l'étude bibliographie du cisaillement d'une bulle dans un fluide. Dans le chapitre 3 nous décrirons le dispositif expérimental réalisé au laboratoire ayant fait suite à cette étude.

2.1 Contexte de l'étude

Les suspensions sont le mélange d'une phase fluide et d'inclusions quelconques non miscibles avec le fluide [32]. Les mortiers, les boues de forage, les plâtres dans le génie civil, les crèmes, les gels coiffants, les vernis dans la cosmétique, les soupes, les compotes, les pâtes de gâteaux dans l'agroalimentaire sont des exemples de suspensions. Les inclusions peuvent être des particules solides, des gouttes liquides ou des bulles de gaz suspendues dans le fluide porteur (newtonien ou non-newtonien). Le comportement des suspensions a été étudié expérimentalement et théoriquement par de nombreux auteurs.

La première étude visant à estimer la viscosité macroscopique effective d'une suspension diluée de particules solides dans un fluide newtonien a été menée par A. Einstein en 1906 [31]. Pour une suspension de sphères dures ayant une fraction volumique φ faible suspendues dans un fluide newtonien de viscosité μ , la viscosité globale μ^{hom} est donnée par :

$$\mu^{hom} = \mu (1 + 2, 5\varphi) \tag{2.1}$$

L'estimation d'Einstein n'est valable que pour les valeurs de la fraction volumique inférieures à quelques pourcents (3 à 5).

Ensuite, en 1959, Krieger et Dougherty [38] ont proposé une loi empirique pour une suspension concentrée :

$$\mu^{hom} = \mu (1 - \frac{\varphi}{\varphi_m})^{-2.5\varphi_m} \tag{2.2}$$

où φ_m représente la fraction volumique maximale des particules que l'on peut inclure dans la suspension. La fraction volumique maximale φ_m correspond aussi à la valeur pour laquelle la viscosité de la suspension diverge vers l'infini. Sa valeur dépend de la forme, de la distribution de taille et de l'arrangement des particules. Le modèle de Krierger et Dougherty est un des plus utilisés parmi les modèles empiriques.

En 1972, Batchelor et Green [6] ont proposé une extension de la formule de Einstein pour des suspensions de sphères de concentration inférieure à 10%. En prenant en compte les interactions hydrodynamiques entre paires de particules, les auteurs ont rajouté un terme d'ordre 2 en φ , la nouvelle estimation s'écrit donc :

$$\mu^{hom} = \mu (1 + 2, 5\varphi + B\varphi^2) \tag{2.3}$$

Dans le cas où les particules sont browniennes on a B = 6, 2. Pour un écoulement élongationel de particules sphériques non browniennes on a B = 7, 6. Dans le cas où la microstructure de la suspension reste isotrope, en utilisant la relation obtenue par Hashin pour un matériau composite élastique renforcé par des inclusions rigides, la viscosité peut être estimée en utilisant la relation :

$$\mu^{hom} = \mu(1+2, 5\varphi+5, 2\varphi^2) \tag{2.4}$$

De nombreuses autres relations ont été proposées pour estimer les caractéristiques globales d'une suspension de particules dans un fluide newtonien. Comme dans la suite de ce document, nous n'utiliserons que les relations (2.1) et (2.2), nous invitons le lecteur intéressé par ce sujet à consulter une des nombreuses synthèses bibliographiques disponibles dans la littérature [26], [47], [44] ou [39]. La majorité de ces travaux sont consacrés au comportement de particules suspendues dans un fluide newtonien. Cepedant, dans de nombreuses situations, les particules sont dispersées dans un fluide non newtonien. Nous nous intéressons plus particulièrement ici aux situations où le fluide suspendant est un fluide à seuil. Ces matériaux se comportent comme des solides viscoélastiques lorsqu'ils sont soumis à une contrainte inférieure à une valeur critique (appelée « contrainte seuil »). Par contre, ils coulent comme des liquides lorsque la contrainte appliquée est supérieure à la contrainte seuil. Cette propriété joue un rôle pratique dans de nombreuses applications, comme la mise en œuvre des matériaux de construction, le pompage des bétons ou l'enduction de mortier par exemple. Différents travaux de la littérature se sont intéressés au comportement des suspensions de particules dans un fluide à seuil.

En se basant sur la méthode sécante « modifiée » de Ponte Castañeda et Suquet [16], Chateau et al. [19] ont proposé des estimations théoriques pour les caractéristiques rhéologiques globales d'une suspension de particules non colloïdales et non browniennes immergées dans un fluide de type Herschel-Bulkley. La loi de Herschel-Bulkley s'écrit :

$$\tau(\dot{\gamma}) = \tau_c + \eta \dot{\gamma}^n \tag{2.5}$$

où $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement, $\tau(\dot{\gamma})$ la contrainte, τ_c la contrainte seuil, η la consistance et n l'indice de rhéofluidification du fluide). Les auteurs ont supposé que les particules sont rigides, indéformables, sphériques, monodisperses et non colloïdales et que le fluide porteur est incompressible et homogène. Dans le modèle, il y a adhérence parfaite entre les particules et le fluide porteur. Dans le cas où le fluide porteur obeit à la loi de Herschel-Bulkley, l'estimation pour la contrainte seuil adimensionnée est donnée par :

$$\frac{\tau_c^{hom}}{\tau_c} = \sqrt{(1-\varphi)g(\varphi)}$$
(2.6)

et la consistance adimensionnée s'écrit :

$$\frac{\eta^{hom}}{\eta} = \sqrt{\frac{g(\varphi)^{n+1}}{(1-\varphi)^{n-1}}}$$
(2.7)

où $g(\varphi)$ désigne le module élastique adimensionné de la suspension de même composition et de même morphologie, τ_c , η et n désignant respectivement le seuil, la consistance et l'indice plastique du fluide porteur. Ces résultats ont été validés par comparaison avec les résultats expérimentaux de Mahaut [45], [46], obtenus en utilisant une procédure permettant de se rapprocher au mieux des hypothèses formulées pour élaborer le modèle. Ces travaux contribuent ainsi à la mise au point d'outils théoriques d'aide à la formulation de divers produits obtenus en mélangeant des particules non colloïdales à un fluide non newtonien, comme les bétons et les pâtes alimentaires par exemple.

Les caractéristiques d'une suspension isotrope de particules sphériques non colloïdales dans un fluide à seuil ont été étudiées expérimentalement par F. Mahaut durant sa thèse [45], [46]. Il a suspendu des billes de verre ou de polystyrène sphériques, rigides et monodisperses de différentes tailles dans des pâtes-une émulsion inverse, un microgel polymère (carbopol) et une suspension colloïdale d'argile (bentonite)-qui sont des fluides à seuil. Il a montré que le module élastique adimensionné $G(\varphi)/G(0)$ et la contrainte seuil adimensionnée $\tau_c(\varphi)/\tau_c(0)$ ne dépendent que de la fraction volumique en particules (G(0) et τ_c sont respectivement le module et le seuil de la pâte sans particules/du fluide suspendant. Il a trouvé que l'évolution du module élastique en fonction de la concentration s'accorde bien avec la loi empirique de Krieger-Dougherty $G(\varphi)/G(0) = (1 - \varphi/\varphi_m)^{-2,5\varphi_m}$ avec $\varphi_m = 0,57$. Il a aussi vérifié que l'évolution du seuil de la suspension en fonction de la concentration est reliée à l'évolution du module élastique en fonction de la concentration par la loi (2.6) avec $g(\varphi) = G(\varphi)/G(0)$ et $\tau_c^{hom} = \tau_c(\varphi)$ en accord avec les résultats de [19].

Vu et al. [65] ont généralisé ces résultats au cas des suspensions de particules sphériques non browniennes polydisperses. Les auteurs ont proposé une estimation du module d'élasticité macroscopique G par une loi de Krieger-Doughety modifiée pour une suspension polydisperse :

$$\frac{G(\varphi,\lambda,\xi)}{G(0)} = \left(\frac{1-\varphi}{\varphi_m(\lambda,\xi)}\right)^{-1.43}$$
(2.8)

où λ désigne le rapport de tailles des particules et ξ la proportion de particules fines dans le mélange granulaire. En combinant avec le résultat obtenu dans le cadre de l'approche d'homogénéisation non linéaire [19], la contrainte seuil τ_c de la suspension peut être calculée par la relation :

$$\frac{\tau_c(\varphi,\lambda,\xi)}{\tau_c(0)} = \sqrt{(1-\varphi)(1-\varphi/\varphi_m)^{-1,43}}$$
(2.9)

avec $\tau_c(0)$ le seuil du fluide suspendant.

Dans les relations (2.8) et (2.9), $\varphi_m(\lambda,\xi)$ désigne la fraction d'empilement maximale aléatoire (random close packing) du mélange granulaire suspendu dans le fluide. La valeur de φ_m est évidemment une fonction de la composition du mélange granulaire décrite par les deux paramètres λ et ξ et qui peut être déterminée en utilisant des modèles du type de celui proposé par de Larrard [25]. A côté de ces travaux consacrés aux suspensions de particules dans les fluides à seuil, il est frappant de constater que la situation où des bulles sont suspendues dans un fluide à seuil n'a pas été étudiée à notre connaissance. L'incorporation de bulles dans les fluides à seuil permet de formuler des matériaux « aérés » comme les mortiers de façade aérés ou les mousses de plâtre dans l'industrie du génie civil. L'ajout d'air à un matériau entraîne une modification de plusieurs de ses propriétés macroscopiques. Les matériaux aérés permettent non seulement d'améliorer les propriétés d'isolation thermique et acoustique mais aussi d'alléger le matériau. Ils participent au développement durable et à diminuer la consommation énergitique. La principale différence entre les suspensions de bulles et les suspensions de particules est liée au caractère déformable des bulles. La mise en écoulement du fluide porteur a donc tendance à provoquer la déformation des bulles. Cette tendance à la déformation des bulles est compensée par la tension de surface régnant à l'interface entre l'air contenue dans la bulle et le matériau suspendant qui a tendance à « ramener » la bulle dans une configuration sphérique. Le caractère plus ou moins déformable de la bulle par rapport à son milieu environnement est en général quantifié par un nombre capillaire fonction de la valeur de la tension de surface, de la taille de la bulle et des propriétés mécaniques du matériau suspendant (viscosité, module d'élasticité ou autres...). Comme une bulle peut être dispersée dans des milieux très divers (liquide, solide, fluide à seuil,...) il n'existe évidemment pas de définition universelle du nombre capillaire.

La plupart des études disponibles dans la littérature sur ce sujet sont consacrées aux situations pour lesquelles une ou plusieurs bulles sont suspendues dans un fluide newtonien. Taylor [62] a notamment proposé une généralisation de la formule d'Einstein pour des suspensions de bulles très diluées. Dans cette situation, le nombre capillaire quantifie le rapport entre la contrainte visqueuse appliquée à la goutte et sa déformabilité propre quantifiée par la pression capillaire :

$$Ca = \frac{\mu \dot{\gamma}}{\sigma/a} \tag{2.10}$$

avec $\dot{\gamma}$ taux de cisaillement macroscopique, σ tension de surface air/fluide et *a* rayon de la bulle. Quand ce nombre est très faible, la bulle est indéformable et la viscosité de la suspension diluée vaut :

$$\mu_{Ca=0}^{hom} = \mu(1+\varphi) \tag{2.11}$$

où μ désigne la viscosité du fluide suspendant et μ^{hom} la viscosité de la suspension. Quand le

nombre capillaire est très grand, la bulle est complétement déformable et la viscosité macroscopique est une fonction décroissante de la fraction volumique en bulles et s'écrit :

$$\mu_{Ca\to\infty}^{hom} = \mu(1 - \frac{5}{3}\varphi) \tag{2.12}$$

Partant de cette étude « pionière », on retiendra surtout les travaux expérimentaux de Rust et Manga [55], [54] qui se sont attachés à valider les travaux théoriques de Frankel et Acrivos [33] consacrés à la prédiction du comportement d'une suspension diluée d'inclusions visqueuses dans une matrice également visqueuse. Une présentation plus détaillée des résultats obtenus par Rust et Manga sera donnée dans le paragraphe (2.6).

2.2 Suspension de bulles dans un matériau homogène

On s'intéresse aux propriétés rhéologiques d'une suspension de bulles dans un matériau homogène. On se restreint ici aux situations pour lesquelles les bulles occupent des domaines disjoints suffisament éloignés les uns des autres pour qu'elles puissent adopter une forme sphérique quand les efforts intérieurs sont nuls dans le fluide suspendant. Les matériaux du type mousse sont donc exclus du domaine de cette étude.

De nombreux travaux ont déjà été consacrés à la modélisation du comportement de ce type de matériaux, que ce soit dans le cadre de la mécanique des milieux poreux [23], la micromécanique des milieux poreux [27], la rhéologie des suspensions de bulles [29], [55]. Alors que dans les études consacrées aux milieux poreux le couplage géométrique entre la déformation des pores et la déformation de la matrice est négligé (hypothèse de petites perturbations [56]), la majorité des travaux consacrés aux suspensions de bulles dans un fluide prend en compte ce couplage. Il convient de souligner qu'à l'exception des travaux expérimentaux menés par Lucie Ducloué durant sa thèse [29], [30], les autres études n'ont considéré que les situations où le comportement de la matrice était linéaire (élastique, visqueux ou viscoélastique). Les émulsions peu concentrées ou suspension de gouttes dans un fluide constituent une classe de matériaux dont les propriétés rhéologiques et morphologiques sont très proches de celles des suspensions de bulles. De nombreux travaux ont été également consacrés à ces systèmes [20], [50].

Comme pour les suspensions de bulles, ces travaux ne considèrent que des comportement linéaires de la matrice.

L'objectif de ce travail est d'étudier le comportement de suspensions de bulles dans des fluides non newtoniens du type fluide à seuil par une approche par changement d'échelles d'espace. Cette étude prolonge donc l'étude par homogénéisation du comportement des suspensions de particules non colloïdales et non browniennes [19] et [65] déjà réalisée au laboratoire.

Dans la suite de ce chapitre nous commençerons par présenter rapidement les résultats expérimentaux obtenus par Lucie Ducloué durant sa thèse [29]. Ces résultats expérimentaux nous serviront à valider les approches théoriques développées dans la suite de ce travaux. Nous nous intéressons alors à la prédiction des caractéristiques rhéologiques d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil. Après avoir constaté que les approches par changement d'échelle d'espace mise en œuvre classiquement pour traiter du comportement des milieux poreux non saturés [27], [17], [18] sont incapables de rendre compte du couplage entre déformation de la matrice et effets capillaires mis en évidence expérimentalement, nous mettons en œuvre une méthode de changement d'échelle pour étudier le comportement d'une suspension de bulles dans un matériau élastique subissant de grandes transformations. La linéarisation de ce modèle général débouche sur un modèle linéaire couplant déformation de la matrice solide et déformation de la bulle. Dans le (4), nous nous intéressons au calcul effectif des propriétés globales d'une suspension de bulles dans un milieu élastique isotrope. Enfin dans la dernière partie, nous mettons en œuvre une méthode d'homogénéisation non linéaire pour traiter du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil avant de conclure et de recenser les perspectives ouvertes par ce travail.

2.3 Résultats expérimentaux

Nous présentons ici rapidement les résultats expérimentaux qui serviront de référence pour valider les prédictions des modèles élaborés dans ce travail. Compte tenu de la rareté des données expérimentales concernant les suspensions de bulles dans un fluide à seuil disponibles dans la littérature, nous nous appuyerons presque exclusivement sur les résultats obtenus par Lucie Ducloué durant son travail de thèse au laboratoire Navier [29]. Lucie Ducloué a en effet travaillé avec des système modèles correspondant parfaitement aux hypothèses formulées pour construire les modèles présentés dans la suite de ce document. Par ailleurs, ce travail ayant été mené au même endroit et en même temps que l'étude présentée dans les pages qui suivent, il a été particulièrement facile de récupérer ces données.

Les fluides à seuil utilisés par Lucie Ducloué sont des émulsions concentrées dont la formulation permet d'ajuster les propriétés rhéologiques. Il s'agit d'émulsions directes (gouttes d'huile dans une phase aqueuse stabilisées par différents tensioactifs : TTAB, SDS, Tween20 et Forafac). A l'échelle macroscopique, ces émulsions se comportent comme des fluides à seuil simples : à très faible vitesse de cisaillement, elles se comportent comme un matériau élasto plastique parfait incompressible tandis que pour les « fortes »valeurs des vitesses de cisaillement elles se comportent comme des fluides de Herschel-Bulkley (voir la figure (2.1) extraite de [29]). A faible vitesse de cisaillement, le comportement de l'émulsion s'écrit donc :

$$\operatorname{tr} \boldsymbol{\varepsilon} = 0 \tag{2.13a}$$

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} \tag{2.13b}$$

$$\boldsymbol{\tau} = 2G\boldsymbol{\varepsilon} \tag{2.13c}$$

si $\tau_{eq} < \tau_c$ avec τ_c la contrainte seuil, ε le tenseur des déformations linéarisé, σ le tenseur des contraintes de Cauchy, p la pression régnant dans le matériau, δ le tenseur identité du second ordre, G le module de cisaillement élastique et τ_{eq} la contrainte équivalente définie par :

$$\tau_{eq} = \sqrt{\frac{1}{2}\boldsymbol{\tau}:\boldsymbol{\tau}} = \sqrt{\frac{1}{2}\tau_{ij}\tau_{ji}}$$
(2.14)

La convention d'Einstein (sommation sur les indices répétés) est employée dans la formule (2.14) et sera utilisée dès que nécessaire dans la suite du document. Il convient de noter que la loi de

comportement décrite par les équations (2.13a) à (2.13c) n'est valable que dans le régime des petites déformations (i.e $\varepsilon_{ij} \ll 1$) [56].



FIGURE 2.1 – Comportement sous le seuil de contrainte (à gauche) et au dessus du seuil de contrainte (à droite) d'une émulsion modèle (figure extraite de [29]).

Le comportement en écoulement de l'émulsion est décrit par les équations suivantes :

$$\operatorname{tr} \boldsymbol{d} = 0 \tag{2.15}$$

$$d = 0 \qquad \qquad \text{si} \quad \tau_{eq} < \tau_c \qquad (2.16a)$$

$$\boldsymbol{\tau} = 2\left(\frac{\tau_c}{\dot{\gamma}_{eq}} + \eta \dot{\gamma}_{eq}^{n-1}\right) \boldsymbol{d} \qquad \qquad \text{si} \quad \tau_{eq} \ge \tau_c \qquad (2.16b)$$

avec d le tenseur des taux de déformation eulérien, η la consistance, n l'indice plastique et $\dot{\gamma}_{eq}$ le taux de déformation équivalent défini par :

$$\dot{\gamma}_{eq} = \sqrt{2\boldsymbol{d}:\boldsymbol{d}} = \sqrt{2d_{ij}d_{ji}} \tag{2.17}$$

Il convient de noter que les équations (2.15) et (2.16) sont valables quelque soit la valeur du taux de déformation équivalent (dans la limite de pertinence du modèle bien sur). Les équations (2.13c) et (2.15) sont bien compatibles puisque sous l'hypothèse des transformations infinitésimales, on a :

$$\dot{\varepsilon} = d \tag{2.18}$$

L'introduction de bulles de taille contrôlée au sein du fluide à seuil se fait en mélangeant une mousse aqueuse monodisperse produite séparément à l'émulsion modèle. Diverses précautions sont prises lors de la fabrication de cette mousse (utilisation de la même solution aqueuse pour la mousse et l'émulsion par exemple) pour obtenir un fluide à seuil simple aux propriétés bien contrôlées. Le lecteur intéressé par le détail des procédures employées est renvoyé à la thèse de Lucie Ducloué [29] pour une description détaillée.

Au final, Lucie Ducloué a formulé plusieurs suspensions de bulles dans des fluides à seuil de module élastique comprise entre 163 ± 10 Pa et 799 ± 40 Pa, de contrainte seuil comprises entre $7,2 \pm 0,5$ Pa et $40 \pm 0,2$ Pa et pour des tensions de surface σ solution aqueuse-air comprise entre $15,5 \pm 0,1 \text{ mNm}^{-1}$ et 36 mNm^{-1} . Le rayon des bulles est compris entre $4 \pm 5 \mu \text{m}$ et $1000 \pm 100 \mu \text{m}$ tandis que la fraction volumique en bulles maximale atteinte est égale à 63 % (voir le tableau (2.1) de [29]).

Le comportement rhéologique des suspensions a été étudié dans le régime des faibles déformations et dans le régime d'écoulement. Seuls les résultats concernant le régime des suspensions pour lequel les bulles occupent des domaines sphériques au repos sont présentés ici.

Intéressons nous d'abord aux mesures du module élastique macroscopique des suspensions. Comme il est classique pour les suspensions de bulles [36], [30] ou les suspensions de gouttes [29], [30], on observe que le module adimensionné (c'est-à-dire le module élastique de la suspension divisé par le module du fluide porteur) dépend simultanément de la fraction volumique en bulles, notée φ et d'un nombre capillaire adimensionné Ca_{elast} défini par :

$$Ca_{elast} = \frac{G}{\sigma/a} \tag{2.19}$$

Les valeurs des modules d'élasticité adimensionnés mesurés pour diverses formulations correspondantes à diverses valeurs du nombre capillaire élastique sont représentées sur la figure (2.2). Comme on le constate sur la figure (2.2), le module de cisaillement adimensionné est une fonc-



FIGURE 2.2 – Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles pour différentes valeurs du nombre capillaire élastique.

tion décroissante de la fraction volumique en bulles dont le taux de décroissance est d'autant plus grand que le nombre capillaire est grand.

On peut évidemment tracer le même type de diagramme pour la contrainte seuil adimensionnée en fonction de la fraction volumique pour l'ensemble des systèmes étudiés (figure (2.3)).

Les travaux d'Eric Dufresne et de son équipe [58], [59] constituent une seconde référence expérimentale intéressante. Ils ont observé les déformations microscopiques de gouttes de fluides

	physico-chimie			rhéologie		capilarité			
Emulsion	phase disp	phase cont.	diamètre	G(Pa)	$\tau_c(\text{Pa})$	σ (mN/m)	$a \ (\mu m)$	$\sigma/(2a)$ (Pa)	φ
	frac. vol.		gouttes						
							50 ± 10	360 ± 82	0 - 48 %
1	dodécane -	SDS 2,7% m	$4\pm2~\mu{ m m}$	285 ± 20	$10\pm0,\!4$	36 ± 1	143 ± 17	120 ± 18	0-45 %
	73 %	dans l'eau							
							800 ± 40	$23 \pm 1,7$	0-49 %
2a	silicone (V20) -	Forafac 4 % m	$10 \pm 4 \ \mu \mathrm{m}$	230 ± 20	$12\pm0,3$	$15,5\pm0,1$	41 ± 5	189 ± 54	0-36 %
	75 %	dans l'eau							
2b	silicone (V20)-	Forafac 4 % m	$10 \pm 4 \ \mu m$	163 ± 10	$7,2\pm0,5$	$15,5\pm0,1$	129 ± 10	60 ± 11	0-41 %
	73 %	dans l'eau							
ପ୍ଟେ	slicone (V350)	TTAB 3 %	$2\pm1~\mu{ m m}$	650 ± 50	40 ± 2	35 ± 1	1000 ± 100	$18 \pm 2,2$	0 - 47 %
	-79 %	m dans							
		eau/glycérol							
		50/50 m/m							
4a	slicone (V350)	TTAB 3 %	$2,5\pm1~\mu\mathrm{m}$	650 ± 50	$20{,}5\pm0{,}5$	35 ± 1	50 ± 10	350 ± 80	0 - 44 %
	-70 %	m dans							
		eau/glycérol							
		36/64 m/m							
4b	slicone (V350)	TTAB 3 %	$2,5\pm1~\mu{ m m}$	799 ± 40	$20{,}5\pm0{,}5$	35 ± 1	150 ± 10	117 ± 11	0 - 63 %
	-70 %	m dans							
		eau/glycérol							
		36/64 m/m							



FIGURE 2.3 – Contrainte seuil adimensionnée en fonction de la fraction volumique en bulles pour différentes tailles de bulles et différentes valeurs de la tension de surface.

incompressibles constitués d'un liquide ionique suspendus dans un solide élastique « mou » (un gel de silicone). Le comportement macroscopique du matériau a également été étudié. E. Dufresne a également proposé dans [59] une théorie permettant de prévoir les déformations de la goutte en fonction de la déformation appliquée à la matrice ainsi que le module de Young macroscopique du matériau en fonction du module Young de la matrice, de la taille des gouttes, de la valeur de la tension de surface régnant à l'interface goutte-matrice et de la fraction volumique occupée par les gouttes. Il est à noter que les deux constituants de matériau étudié étant incompressible, le matériau est lui même incompressible à l'échelle macroscopique.

Un point intérssant de cette étude par rapport aux travaux de Lucie Ducloué [29] est qu'il a été montré expériementalement que de très petites gouttes pouvaient provoquer une augmentation des caractéristiques élastiques globales du matériau (voir figure (2.5)). Par contre l'étude expérimentale de E. Dufresne et al. [58], [59] est restreinte aux faibles valeurs de la concentration en inclusion (inférieure à 20%) et au comportement linéaire.

Les principaux résultats de ce travail sont représentés sur la figure (2.4) (déformation microscopique d'une goutte en fonction de la déformation macroscopique appliquée et de sa taille) et sur la figure (2.5) (module de Young macroscopique en fonction de la fraction volumique occupée par les inclusions).

Sur la figure (2.5), les deux courbes en pointillés représentent les prédictions du modèle dit d'Eshelby. Pour un matériau constitué d'une matrice élastique incompressible dans lequel sont suspendues des inclusions sphériques de liquide incompressible, cette estimation s'écrit :

$$E^{hom} = \frac{E}{1 + 5/3\varphi} \tag{2.20}$$

avec φ la fraction volumique en gouttes et E le module de Young de la matrice. Même si cette équation permet bien de prédire les mesures théoriques pour le domaine des fractions volumiques



FIGURE 2.4 – Rapport d'aspect de gouttes de liquide déformées dans un gel de silicone mou en fonction de leur taille et des déformations appliquées. a) Rapport d'aspect de 8 gouttes de taille différente en fonction de la déformation appliquée. b) Evolution du rapport d'aspect en fonction de la taille pour plusieurs valeurs de la déformation. Figures extraites de [58]. Pour tous les systèmes la tension de surface liquide-matrice vaut $0,0036Nm^{-1}$.

éutdiée dans [58], il convient de noter qu'elle ne correspond à aucun modèle classique de la théorie de l'homogénéisation. Par contre elle permet bien de retrouver l'estimation diluée (situation



FIGURE 2.5 – Module de Young du matériau composite en fonction de la fraction volumique en liquide pour deux matrices différentes. a) matrice de module de Young égal à 105kPa. b) matrice de module de Young égal à 3kPa. Pour les deux figures, la courbe représente les prédictions du modèle dit d'Eshelby. Figure tirée de [58].

étudiée par Eshelby dans [66]) dans le cas $\varphi \ll 1$:

$$E^{hom} = E(1 - 5/3\varphi)$$
 (2.21)

L'estimation (2.20) est obtenue à partir de la relation :

$$\zeta = \frac{(\sigma^{\infty})^2}{2E} + \varphi \frac{W}{\frac{4}{3}\pi R^3} = \frac{(\sigma^{\infty})^2}{2E^{hom}}$$
(2.22)

donnée dans [59] sans justification. Dans cette équation, ζ désigne la densité d'énergie élastique globale stockée dans le matériau, R le rayon des inclusions (supposées monodisperses) et W

l'excès d'énergie due à la présence d'une inclusion suspendue dans un solide élastique soumis à une traction simple d'intensité σ^{∞} . Il est à noter qu'une définition de l'énergie élastique en fonction d'une déformation uniaxiale à l'infini aurait conduit à une prédiction de G^{hom} dépendant linéairement de φ alors que la formule (2.22) conduit à une dépendance de E^{hom} et donc de G^{hom} en φ^{-1} . La prédiction des caractéristiques macroscopiques du matériau ne devant pas dépendre du mode de chargement, ce point souligne que l'approche conduisant à la relation (2.22) ne semble pas correcte. La prédiction du comportement macroscopique d'une suspension de bulles dans une matrice élastique est traitée dans le chapitre (4).

2.4 Problème d'inclusion équivalente de Palierne

Les propriétés rhéologiques globales dans le régime linéaire (module complexe) d'une émulsion constituée de deux fluides viscoélastiques linéaires incompressibles ont été calculées par Palierne [50] dans le cadre d'une méthode de changement d'échelle. Dans ce travail la tension de surface régnant à l'interface dépend de la déformation de l'interface : les interfaces se comportent donc comme des interfaces membranaires élastiques avec une tension initiale non nulle.

Comme il est classique pour les méthodes de changement d'échelle, le calcul des propriétés rhéologiques globales de l'émulsion repose sur la résolution d'un problème pour une unique inclusion suspendue dans une matrice.

2.4.0.1 Problème pour une inclusion unique

Palierne a donc considéré le problème d'une matrice qui contient une unique inclusion de rayon a, centrée à l'origine et soumise à un chargement du type déformation uniforme à l'infini. La fraction volumique en inclusions est φ . La déformation ε au point <u>r</u> au temps t s'écrit :

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x},t) = \frac{1}{2}(\operatorname{grad} \underline{\xi} + {}^{t}\operatorname{grad} \underline{\xi})$$
(2.23)

où $\varepsilon(\underline{x}, t)$ désigne le champ de déformation associé au champ de déplacement $\underline{\xi}(\underline{x}, t)$. La déformation ε tend vers une valeur uniforme $\varepsilon^h(t) = \varepsilon^h(0)exp(i\omega t)$ loin de l'inclusion. La relation contrainte-déformation est définie par :

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = -p(\underline{x})\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau}(\underline{x}) \tag{2.24a}$$

$$\boldsymbol{\tau}(\underline{x}) = G^*(\omega)\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) \tag{2.24b}$$

où le module complexe G^* relie la contrainte déviatorique τ et la déformation ε . La valeur de ce module est G_m^* dans la matrice et G_i^* dans l'inclusion. G^* , constant et réel, correspond au solide élastique et $G^* = i\omega\eta$ décrit un fluide newtonien de viscosité η .

Comme il est classique en homogénéisation on se place dans la situation où les forces volumiques (gravité et inertie) sont négligeables. L'équation dynamique s'écrit donc :

$$\operatorname{div}\boldsymbol{\sigma}(\underline{x},t) = 0 \tag{2.25}$$

Le comportement de l'interface séparant l'inclusion de la matrice s'écrit :

$$\boldsymbol{n} = \sigma \boldsymbol{\delta}_{R} + \frac{1}{2} \beta' \operatorname{tr} \boldsymbol{\varepsilon}_{R} \boldsymbol{\delta}_{R} + \beta'' \left(\boldsymbol{\varepsilon}_{R} - \frac{1}{2} \operatorname{tr} \boldsymbol{\varepsilon}_{R} \boldsymbol{\delta}_{R}\right)$$
(2.26)

où *n* désigne le tenseur de membrane dans l'interface occupant la surface r = R, δ_R le tenseur unité du second ordre du plan tangent à l'interface, ε_R le tenseur des déformations de la membrane interfaciale, β' le module de dilatation surfacique et β " le module de cisaillement surfacique.

Palierne a donné dans son papier [50] la solution complète du problème décrit par les équations (2.23) à (2.26).

2.4.0.2 Emulsion monodisperse diluée

Dans le cas d'une émulsion obtenue en suspendant des inclusions sphériques de même taille et même composition dans une matrice homogène, il est légitime de négliger les interactions avec les particules voisines dans le cas dilué. Palierne [50] a montré que dans cette situation le module complexe $G^*(\omega)$ de l'émulsion s'écrit sous la forme :

$$G^*(\omega) = G^*_m(\omega)\left(1 + \frac{5}{2}\varphi\frac{F(\omega)}{D(\omega)}\right)$$
(2.27)

avec

$$F = 2(G_i^* - G_m^*)(19G_i^* + 16G_m^*) + \frac{8\sigma}{a}(5G_i^* + 2G_m^*) + \frac{48\beta'\sigma}{a^2} + \frac{2\beta'}{a}(23G_i^* - 16G_m^*) + \frac{4\beta''}{a}(13G_i^* + 8G_m^*)$$

$$D = (2G_i^* - 3G_m^*)(19G_i^* + 16G_m^*) + \frac{40\sigma}{a}(G_i^* + G_m^*) + \frac{48\beta'\sigma}{a^2} + \frac{32\beta''(\sigma + \beta')}{a^2} + \frac{2\beta'}{a}(23G_i^* + 32G_m^*)$$

$$(2.28a)$$

$$(2.28b)$$

avec φ la fraction volumique occupée par les inclusions.

Pour les valeurs plus importantes de la fraction volumique, on peut mettre en œuvre un schéma de Mori-Tanaka. On obtient alors :

$$G^*(\omega) = G^*_m(\omega) \frac{1 + \frac{3}{2}\varphi \frac{F(\omega)}{D(\omega)}}{1 - \varphi \frac{F(\omega)}{D(\omega)}}$$
(2.29)

2.4.0.3 Inclusions de tailles différentes

On peut très facilement généraliser ces résultats pour prendre en compte une distribution de tailles des inclusions. Dans cette situation l'estimation diluée s'écrit :

$$G^*(\omega) = G^*_m(\omega)\left(1 + \frac{5}{2}\sum_i \varphi_i \frac{F(a_i, \omega)}{D(a_i, \omega)}\right)$$
(2.30)

alors que dans le cas semi-concentré l'estimation de Mori-Tananka s'écrit maintenant :

$$G^{*}(\omega) = G_{m}^{*}(\omega) \frac{1 + \frac{3}{2} \sum_{i} \varphi_{i} \frac{F(a_{i}, \omega)}{D(a_{i}, \omega)}}{1 - \sum_{i} \varphi_{i} \frac{F(a_{i}, \omega)}{D(a_{i}, \omega)}}$$
(2.31)

Il est possible de la même façon d'obtenir des estimations pour un milieu constitué de gouttes sphériques de taille et de composition différentes suspendues dans une matrice homogène en considérant dans les équations (2.28), (2.30) et (2.31) que les valeurs de G_i^* , γ , β' et β " ne sont pas les mêmes pour les différentes classes d'inclusions. Cette situation n'étant pas abordée dans ce travail, nous renvoyons le lecteur intéressé à l'article de Palierne [50] pour plus de détails.

2.4.0.4 Inclusions aux caractéristiques hétérogènes

Les caractéristiques de l'interface ne sont pas faciles à estimer, ni par la théorie ni par l'expérience. La majorité des tentatives pour comparer les données des modules dynamiques avec le modèle de Palierne ont été réalisées avec l'hypothèse que la tension interfaciale est constante $(\beta' = \beta'' = 0)$. Dans ce cas, l'expression théorique de G^* ne contient que des paramètres qui peuvent en principe être déterminés par des mesures indépendantes : module complexe de la matrice $G^*_m(\omega)$ et de la phase dispersée $G^*_i(\omega)$ (dans le cas d'un mélange binaire), tension interfaciale σ et la composition du mélange (φ_i, a_i) [57]. Le module complexe d'une émulsion semi-concentrée s'écrit dans cette situation :

$$G^*(\omega) = G^*_m(\omega) \left(\frac{1 + \frac{3}{2} \sum_i \varphi_i H_i(a_i, \omega)}{1 - \frac{3}{2} \sum_i \varphi_i H_i(a_i, \omega)}\right)$$
(2.32)

où

$$H_{i}(a_{i},\omega) = \frac{8(\frac{\sigma}{a_{i}}(2G_{m}^{*}(\omega) + 5G_{i}^{*}(\omega)) + 2(G_{i}^{*}(\omega) - G_{m}^{*}(\omega))(16G_{m}^{*}(\omega) + 19G_{i}^{*}(\omega))}{40(\frac{\sigma}{a_{i}}(G_{m}^{*}(\omega) + G_{i}^{*}(\omega)) + 2(G_{i}^{*}(\omega) + 3G_{m}^{*}(\omega))(16G_{m}^{*}(\omega) + 19G_{i}^{*}(\omega))}$$
(2.33)

Dans le cas où des particules sphériques rigides sont dispersés dans une matrice viscoélastique $(G_i^*(\omega) \to \infty), H_i(a_i, \omega) = 1$, on a :

$$G^*(\omega) = G^*_m(\omega)(\frac{1+\frac{3}{2}\varphi}{1-\varphi})$$
(2.34)

Dans le cas où la matrice est un fluide newtonien ($G_m^*(\omega) = i\omega\eta_m$), l'équation (2.34) devient dans la situation diluée ($\varphi \ll 1$) :

$$\mu^{hom} = \mu (1 + \frac{5}{2}\varphi) \tag{2.35}$$

C'est l'estimation d'Einstein [31] pour la viscosité d'une suspension diluée.
2.5 Méthode sécante modifiée

On introduit dans ce paragraphe la méthode d'homogénéisation non linéaire permettant d'estimer le comportement macroscopique d'une structure dont les constituants ont un comportement non linéaire.

La méthode d'homogénéisation non linéaire consiste à ramener le problème non linéaire à un problème linéaire pour lequel on peut employer un schéma d'homogénéisation « classique ». Il s'agit d'introduire un niveau de chargement moyen par phase qui permet d'évaluer les propriétés élastiques de la phase en question.

La méthode sécante consiste à écrire une relation non linéaire sous une forme linéaire :

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \mathbb{C}^{sct}(\underline{x}, \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})) : \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})$$
(2.36)

avec $\mathbb{C}^{sct}(\underline{x}, \varepsilon(\underline{x}))$ le tenseur des modules sécants. Chaque phase est associée à un tenseur de module sécant uniforme $\mathbb{C}_i^{sct}(\varepsilon_i)$ où ε_i est indéterminé à cette étape. Le champ de déplacement ξ est solution du problème non linéaire suivant :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x}$$
 (2.37a)

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = 0 \tag{2.37b}$$

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \mathbb{C}^{sct}(\underline{x}, \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})) : \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})$$
(2.37c)

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) = \frac{1}{2} (\operatorname{grad} \underline{\xi}(\underline{x}) + {}^{t} \operatorname{grad} \underline{\xi}(\underline{x}))$$
(2.37d)

La résolution du problème (2.37) étant impossible, on remplace le champ $\varepsilon(\underline{x})$ par sa « valeur moyenne » dans chaque phase. On a donc :

$$\varepsilon(\underline{x}) \simeq \varepsilon_i \qquad (\forall \, \underline{x} \in \Omega_i)$$
 (2.38)

Le choix de déformation de référence ε_i est limité à la valeur moyenne par phase $\langle \varepsilon \rangle_i$ (approche sécante classique) et au moment d'ordre deux du champ de déformation $\sqrt{\langle \varepsilon^2 \rangle_i}$ (approche sécante modifiée). Le comportement macroscopique du matériau non linéaire est estimé en assimilant les moyennes de la contrainte et de la déformation par phase dans le matériau non linéaire à celles du milieu linéaire de référence :

$$\boldsymbol{\Sigma} = \sum_{i} \varphi_{i} \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{i} = \sum_{i} \varphi_{i} \mathbb{C}_{i}^{sct} : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{i} = \tilde{\mathbb{C}}(\varphi_{i}, \mathbb{C}_{i}^{sct}) : \boldsymbol{E}$$
(2.39)

où \mathbb{C} désigne le tenseur d'élasticité des modules sécants définis en chaque point de chaque phase *i*. Il est évalué selon la morphologie considérée grâce à l'un des modèles d'homogénéisation linéaire choisi.

Suquet [60] a montré que la meilleure estimation des caractéristiques non linéaires était obtenue avec le choix $\mathbb{C}_i^{sct} = \mathbb{C}_s^{sct}(\sqrt{\langle \varepsilon \rangle^2})$. Dans cette situation, le champ de module sécant est homogène par phase, ce qui simplifie la résolution du problème.

2.6 Etude du cisaillement d'une bulle dans un fluide

Une partie de cette thèse vise à etudier expérimentalement le cisaillement simple d'une bulle dans un fluide à seuil. Pour cela, il nous faut tout d'abord mettre au point un dispositif de cisaillement qui permet de réaliser cette expérience et choisir le fluide dans lequel sera suspendue la bulle. Avant de présenter en détail les travaux que nous avons menés, nous rappelons dans les paragraphes qui suivent quelques résultats de la littérature concernant quelques études expérimentales et théoriques de bulles cisaillées dans un fluide newtonien.

2.6.0.5 Etude de Taylor [62]

La déformation et la rupture d'une goutte suspendue dans un fluide visqueux newtonien soumis à un écoulement de cisaillement simple ont été étudiées expérimentalement et théoriquement par G. I. Taylor [62].

Pour cela, parmi une variété infinie de champs de vitesse possibles, deux types d'écoulement qui peuvent être facilement reproduits en pratique ont été choisis. Le premier dont les lignes de courant sont des hyperboles est décrit par les équations :

$$u = Cx \tag{2.40}$$

$$v = -Cy \tag{2.41}$$

Le deuxième dont les lignes de courant sont des lignes droites est décrit par :

$$u = \alpha y \tag{2.42}$$

$$v = 0 \tag{2.43}$$

L'écoulement décrit par les équations (2.40) et (2.41) est un écoulement d'extension biaxial (voir figure (2.6)) tandis que l'écoulement décrit par les équations (2.42) et (2.43) est un écoulement de cisaillement simple. Les valeurs de C et α peuvent être calculées dans des expériences. Pour reproduire approximativement les champs de vitesse décrits par (2.40), (2.41), (2.42) et (2.43), deux dispositifs expérimentaux ont été mis au point : le dispositif du type « quatre rouleaux » et celui du type « bandes parallèles » . La figure (2.6) représente le dispositif du type « bandes parallèles »et les lignes de courant générées par le dispositf du type « quatre rouleaux » . Dans toutes les expériences, l'appareil est rempli avec un fluide visqueux newtonien (une solution sucrée concentrée, puis diluée avec une petite quantité d'eau) dont la viscosité μ varie entre 5 et 15 Pa.s. Une goutte de rayon a, de viscosité μ' est insérée dans ce fluide à l'aide d'une seringue avant déclencher le moteur du dispositif. Différent liquides non-miscibles avec l'eau ont été utilisés (CCl_4 et paraffine, huile de graissage, mélange de brai de goudron...) pour produire la goutte afin d'explorer une large gamme du rapport des viscosités $\lambda = \mu'/\mu$. La valeur de la viscosité μ' varie donc entre 0,0034 et 200 *Pa.s.* Sous l'influence de la tension de surface, la goutte est sphérique au repos. L'expérimentateur prend une photo pour mesurer le rayon initial de la goutte. Le dispositif est mis en marche à faible vitesse jusqu'à ce que la goutte atteigne une configuration stable et stationnaire. Une photo est prise ce moment-là. Puis la vitesse du dispositif est augmentée et d'autres photos sont prises. Ces opérations sont poursuivies jusqu'à

ce que l'écoulement provoque la rupture de la goutte.



FIGURE 2.6 – A gauche : lignes de courant générées par appareil à quatre rouleaux créant un écoulement purement élongationnel, d'après Tretheway et Leal [64]. A droite : dispositif du type « bandes parallèles » de cisaillement simple d'une bulle dans un fluide newtonien. D'après Taylor [62].

Pour une goutte soumise à un cisaillement simple avec le dispositif « bandes parallèles », l'écoulement du fluide provoque une déformation et une orientation de la goutte par rapport à la direction du cisaillement simple caractérisée par l'angle θ (voir figure 2.7). Dans la limite des petites déformations, la goutte déformée est généralement considérée comme un ellipsoïde dont la demi grande longueur est notée L et la demi petite longeur est notée B (voir figure 2.7). Afin de caractériser l'anisotropie de la goutte déformée, Taylor introduit un paramètre adimensionné D = (L - B)/(L + B). Taylor a montré que la déformation et la condition de rupture d'une goutte soumise à un type d'écoulement donné dépendent :

- du rapport des viscosités des deux fluides $\lambda = \mu'/\mu$
- du rapport entre la contrainte visqueuse $\mu \dot{\gamma}$ du fluide cisaillé autour de la goutte et la contrainte capillaire σ/a à l'interface de la goutte où $\dot{\gamma}$ désigne le taux de cisaillement imposé par le dispositif et σ désigne la tension de surface entre deux liquides. Ce rapport s'exprime par :

$$Ca = \frac{\mu \dot{\gamma} a}{\sigma} \tag{2.44}$$

D'après les résultats expérimentaux, la rupture d'une goutte soumise à un cisaillement simple dépend principalement du rapport des viscosités. Voici quelques observations des tailles en fonction du paramètre λ :



FIGURE 2.7 – Paramètres géométriques caractérisant la forme et l'orientation d'une goutte soumise à un écoulement de type cisaillement simple

- Pour $\lambda = 0,0003$, la goutte s'allonge presque indéfiniment mais ne se casse pas même quand la vitesse maximale est atteinte.
- Pour $\lambda = 0, 5$ la goutte casse pour Ca = 1, 4.
- Pour $\lambda = 1$ la goutte casse pour Ca = 0, 5.
- Pour $\lambda = 20$ la goutte casse pour Ca = 0, 3 dans les expériences avec le dispositif « quatre rouleaux » mais elle ne casse pas dans les expériences avec le dispositif « bandes parallèles » même quand la vitesse maximale est atteinte.



FIGURE 2.8 – Exemple de variation de D en fonction de Ca dans un écoulement de cisaillement simple pour $\lambda = 20$. D'après Taylor [62]

En résumé lorsque Ca est faible ou λ supérieur à quelques unités, la goutte atteint une forme ellipsoïdale d'équilibre alors qu'elle se déforme progressivement jusqu'à se fragmenter en plusieurs gouttelettes quand Ca est élevé pour λ inférieur à quelques unités. La figure (2.8) présente la variation de D en fonction de Ca dans un écoulement de cisaillement simple dans le cas où $\lambda = 20$.

Les études analytiques de Taylor [62] [61] ont montré que :

$$D = Ca \times \frac{19\lambda + 16}{16\lambda + 16} \quad \text{et} \quad \theta = 45^{\circ} \qquad \text{pour} \quad \lambda \simeq 1 \quad \text{et} \quad Ca \ll 1 \qquad (2.45a)$$
$$D = \frac{5}{4\lambda} \quad \text{et} \quad \theta = 0^{\circ} \qquad \qquad \text{pour} \quad \lambda \gg 1 \quad \text{et} \quad Ca \simeq 1 \qquad (2.45b)$$

D'après les études de Taylor, si le paramètre adimensionné D dépasse une valeur critique $Ca_{cri} = 0, 5$, la goutte sera cassée en plusieurs gouttelettes.

L'auteur a trouvé un bon accord entre les expériences et les calculs théoriques dans le cas des faibles vitesses d'écoulement ($D < 0, 2, \lambda \sim 1, Ca \ll 1$). A forte vitesse, l'effet produit par l'écoulement varie d'une manière importante avec λ .

Les travaux de Taylor [61], [62] sont considérés comme les recherches pionnières pour les études de déformations de gouttes isolées suspendues dans un fluide newtonien. Ces travaux ont ensuite été généralisés et approfondis par plusieurs auteurs dont R. G. Cox en 1969 [24], Rallison [52], Rallison et Acrivos [53] ou Rust et Manga [54].

2.6.0.6 Etude numérique de Cox [24]

La déformation d'une goutte dans un écoulement de fluide dépendant du temps a été étudiée par R. G. Cox en 1969 [24]. Dans son article, la déformation de la goutte est supposée petite. Les champs de vitesse solutions sont cherchés sous forme de développement en série fonction du paramètre ϵ . Les solutions obtenues sont donc valables pour toutes les valeurs de λ et de Ca tant que l'hypothèse de petites déformations de la goutte est vérifiée. Grâce à cette méthode, le problème de la détermination de la forme d'une goutte dans un écoulement dépendant du temps n'est pas plus difficile que celui d'une goutte soumise à un cisaillement stable et stationnaire. D'après Cox, on voit qu'après un certain temps, la goutte prend une forme stable avec une déformation donnée par :

$$D = \frac{5(19\lambda + 16)}{4(\lambda + 1)\sqrt{(19\lambda)^2 + (20Ca^{-1})^2}}$$
(2.46a)

$$\theta = \frac{\pi}{4} + \frac{1}{2} \tan^{-1}(\frac{19\lambda}{20Ca^{-1}})$$
(2.46b)

Pour un écoulement de cisaillement stable, dans le cas où $\lambda = 0(1)$ et $Ca \rightarrow 0$ nous avons :

$$D \sim \frac{19\lambda + 16}{16(\lambda + 1)} Ca \tag{2.47a}$$

$$\theta \sim \frac{\pi}{4}$$
 (2.47b)

et dans le cas où $Ca^{-1}=0(1)$ et $\lambda\to\infty$ nous avons :

$$D \sim \frac{5}{4} \lambda^{-1} \tag{2.48a}$$

$$\theta \sim \frac{1}{2}\pi \tag{2.48b}$$

Les expressions (2.47a) et (2.47b) s'accordent bien avec la forme de la goutte soumise à un écoulement de cisaillement observée par Taylor [62] dans le cas où l'effet de la tension de surface

est dominante sur l'effet visqueux. Pour la situation inverse où l'effet de la tension de surface est négligé, (2.48a) et (2.48b) s'accordent bien avec les résultats de Taylor. Au contraire, pour des nombres $Ca^{-1} > 0, 2$, l'équation (2.46a) prévoit des déformations plus faibles que celles prévues par les calculs analytiques de Taylor.

2.6.0.7 Etude de Rallison [52]

En 1984, J. M. Rallison [52] a continué les études sur le problème de la déformation d'une petite goutte visqueuse/bulle suspendue dans un fluide soumis à un cisaillement. Ses travaux théoriques et expérimentaux ont pour but d'expliquer la déformation d'une goutte dans un fluide produit par un écoulement ainsi que de trouver la vitesse de l'écoulement provoquant la rupture de la goutte. Il a également cherché le nombre et la taille des gouttes formées après rupture dans un fluide cisaillé.

Les réponses à ces questions peuvent être utilisées afin de formuler des émulsions (situation où une phase de fluide est dispersée dans une autre phase liquide), pour caractériser sa rhéologie et établir des dispositifs efficaces afin de mélanger différentes phases de fluides. Dans ses études, Rallison a supposé tout d'abord que la goutte/bulle est suffisamment petite, que le nombre de Reynold du fluide suspendant est petit et que la force d'inertie est négligeable. La deuxième simplification est que le centre de la goutte est toujours fixé pour que le seul terme de l'écoulement (qui est responsable de la déformation de la goutte) soit un cisaillement linéaire. En résumé, des petites gouttes suspendues dans un fluide soumis à un cisaillement sont seulement déformées et rompues par le gradient de vitesse local lors de l'expérience. Les grandeurs qui gèrent la déformation et la rupture de la goutte/bulle sont :

- 1. λ , le rapport entre la viscosité de la goutte μ' et celle du fluide suspendant μ ,
- 2. Ca, le nombre capillaire qui représente le rapport entre la force de l'écoulement et la tension superficielle σ , $Ca = \frac{\mu \dot{\gamma}}{\sigma/a}$,
- 3. grad \underline{u} , d et ω qui désigne respectivement le gradient de vitesse applique loin de la goutte/bulle, le taux de déformation et le taux de rotation associés à grad \underline{u} ,
- 4. l'histoire de l'écoulement du fluide,
- 5. la forme initiale de la goutte.

Trois types d'écoulements sont considérés : l'écoulement en cisaillement simple, l'écoulement plan hyperbolique et l'écoulement orthogonal-rhéomètre. Selon les calculs théoriques, l'auteur a montré que quand le taux de cisaillement est faible, $Ca \ll 1$, la déformation d'une goutte est limitée par la tension superficielle. On peut alors utiliser l'estimation linéaire à la déformation stationnaire suivante :

$$D = \frac{19\lambda + 16}{16\lambda + 16} Ca(\boldsymbol{d}_{max} - \boldsymbol{d}_{min})$$
(2.49)

où d_{max} et d_{min} désigne respectivement la plus grande et la plus petite valeur propre du tenseur de taux de déformation. Ce résultat, qui prédit une très faible dépendance de la déformation stable en fonction de la grandeur λ , est en très bon accord avec les expériences. Dans le cas où la

viscosité de la goutte η est élevée ($\lambda \gg 1$) et le taux de cisaillement n'est pas trop fort $Ca \leq 1$, une déformation modérée est observée. Le traitement analytique en grandes déformations d'une goutte se base sur la théorie des corps minces (slender body theory) pour les écoulements de Stokes dans lequel l'influence de la goutte est représentée comme une distribution de singularités le long de ses axes plutôt que sur sa surface. Ces estimations sont valables asymptotiquement dans le cas $\lambda \to 0$ et $Ca \to \infty$ (Taylor [63], Buckmaster [13], Acrivos et Lo [1], Hinch [35]). A partir de ces études, le mécanisme de l'explosion d'une goutte suspendue dans un fluide est analysé de la façon suivante :

- 1. Quand le taux de cisaillement extérieur augmente, l'écoulement du fluide autour de la goutte devient plus rapide.
- 2. En conséquence, le gradient de pression à l'intérieur de la goutte augmente.
- 3. Pour conserver le volume de la goutte, la grande longueur de la goutte doit augmenter, et donc la goutte s'étend vers les régions de l'écoulement plus rapide.
- 4. La tension de surface joue un rôle comme force s'opposant à la rupture de la goutte, mais si la goutte est allongée, cette tension superficielle peut favoriser la rupture de la bulle. La taille et le nombre des gouttes après rupture de la goutte initiale dépendent de l'histoire de l'écoulement.

2.6.0.8 Etude de Rust et Manga [54]

La forme et l'orientation d'une bulle immergée dans un fluide newtonien de faible viscosité soumise à un cisaillement simple ont aussi été étudiées par Rust et Manga [54]. Une version plus simple du dispositif de Taylor a été utilisée : le montage est constitué d'une seule bande au lieu de deux. L'objet à étudier est placé au centre. La figure (2.9) décrit le dispositif expérimental.

Les observations de Rust et Manga ont permis de montrer que la forme stable et l'orientation de la bulle dépendent :

- du rapport λ entre la viscosité de la bulle et celle du fluide suspendant ;
- de la concentration et des caractéristiques des tensio-actifs utilisés ;
- du nombre capillaire $Ca = \frac{\mu \dot{\gamma}}{\sigma/a}$.

Ces auteurs s'accordent pour dire que la déformation d'une bulle est généralement quantifiée soit par D = (L - B)(L + B) soit par L/a où L et B sont respectivement la demi grande longeur et la demi petite longeur de la bulle déformée (voir figure 2.7). D est pratique dans le cas des petites déformations ($Ca \ll 1$) alors que la mesure L/a est plus pratique quand $Ca \gg 1$.

Comme il a déjà été dit dans le cas d'un cisaillement simple, l'angle θ (entre le grand axe et la direction de cisaillement) varie avec Ca. Pour des bulles faiblement déformées ($Ca \ll 1$), l'angle θ est égal à 45° et θ diminue quand Ca augmente.

Rust et Manga ont rassemblé des données pour 15 bulles de rayon a compris entre 0,88 et 2,55 mm et des nombres capillaires Ca compris entre 0,02 et 7,1. La tension de surface est constante approximativement égale à 0,0808 N/m. Les auteurs ont aussi examiné la géométrie de la bulle déformée une fois qu'elle revient à la forme sphérique (quand le cisaillement est arrêté). Les



FIGURE 2.9 – Dispositif de cisaillement du type « Bandes Parallèles », d'après Rust et Manga [54].

résultats expérimentaux de Rust et Manga sont comparés avec les calculs théoriques des autres auteurs : Taylor [62], Rallison [51], Hinch et Acrivos [35], Caneda et al [14]. Dans le cas où $Ca \ll 1$ et $\lambda \ll 1$, l'orientation de la bulle est prédit par Rallison [51] avec la formule suivante :

$$\theta = \frac{\pi}{4} - 0,6Ca \tag{2.50}$$

Dans le cas des grandes déformations, les bulles sont allongées avec des extrémités pointues. En utilisant la théorie des corps minces (slender-body theory), Hinch et Acrivos ont proposé les estimations dans le cas où $Ca \gg 1$ et $\lambda \ll 1$:

$$\theta = \tan^{-1}(0,359Ca^{3/4}) \tag{2.51}$$

Dans le cas $Ca \gg 1$, $\lambda \ll 1$, $Re \ll 1$, ils ont montré que :

$$\frac{L}{a} \simeq 3,45Ca^{1/2}$$
 (2.52)

Canedo et al. [14] ont mesuré expérimentalement la déformation d'une suspension de bulles dans une huile de polybutène dans un dispositif de Couette (qui produit un écoulement similaire à un cisaillement simple). Les auteurs ont constaté que la forme des bulles cisaillées est ellipsoïdale et que les déformations en fonction de Ca (3 < Ca < 50) sont bien décrites par :

$$\frac{L}{a} = 3,1Ca^{0,43} \tag{2.53}$$

L'estimation théorique $Ca \simeq D$ est une bonne prédiction dans le cas Ca < 0, 5. Les résultats de Hinch et Acrivos pour la forme et l'orientation de la bulle dans le cas des grandes déformations



FIGURE 2.10 – Paramètre de déformation adimensionné, D = (L - B)/(L + B) en fonction du nombre capillaire pour des bulles soumises à un écoulement en cisaillement simple avec $\lambda \ll 1$ et $Re \ll 1$. La taille de chaque cercle est proportionnelle à celle de la bulle quand elle n'est pas encore déformée $(0, 88 \le a \le 2, 55mm)$. La courbe en trait plein est l'estimation théorique en petites déformations [62]. La courbe en pointillés est donnée par la relation (2.52) de Hinch et Acrivos [35]. D'après Rust et Manga [54].

fournissent une bonne approximation dans le cas où Ca > 1, 0 et Ca = 0, 5.

Les figures (2.10) et (2.11) représentent les courbes des paramètres géométriques des bulles soumises à un écoulement de cisaillement simple dans les expériences de Rust et Manga et les courbes décrivant les estimations théoriques pour ces bulles.

2.6.0.9 Récapitulatif

Le tableau (2.2) représente les formules de la déformation et de l'orientation de la goutte/bulle soumise à un écoulement de cisaillement simple et le domaine d'emploi de chaque formule.



FIGURE 2.11 – Orientation stable des bulles soumises à un écoulement en cisaillement simple décrite par une relation entre Ca et θ . Le trait plein et la courbe sont des relations théoriques (2.51) de Hinch et Acrivos pour $\theta(Ca)$ à faibles et fortes déformations. D'après Rust et Manga [54].

Référence	D	θ	Ca	λ
Taylor (1932)	$\frac{19\lambda+16}{16\lambda+16}Ca$	$\pi/4$	$Ca \ll 1$	$\lambda \simeq 1$
	$5/4\lambda$	0	$Ca \simeq 1$	$\lambda \gg 1$
	0,5	La goutte casse		$\lambda = 1$
	1,4	La goutte casse		$\lambda = 0, 5$
Cox (1969)	$\frac{19\lambda+16}{16\lambda+16}Ca$	$\pi/4$	$Ca \ll 1$	$\lambda \simeq 1$
	$5/4\lambda$	$\pi/2$	$Ca \simeq 1$	$\lambda \gg 1$
Rallison (1984)		$\pi/4 - 0,6Ca$	$Ca \ll 1$	$\lambda \ll 1$
Hinch et Acrivos (1980)		$\tan^{-1}(0, 359Ca^{3/4})$	$Ca \gg 1$	$\lambda \ll 1$

TABLE 2.2 – Récapitulatif des déformation et orientation de la bulle soumise à un cisaillement simple

Chapitre 3

Cisaillement d'une bulle suspendue dans un fluide à seuil

Afin de mieux comprendre le comportement d'une suspension de bulles dans un fluide nonnewtonien, il faut connaître les propriétés de déformabilité d'une bulle. Pour cela, nous avons étudié le comportement d'une bulle isolée entourée d'une matrice de fluide à seuil soumise à un cisaillement simple.

Dans ce chapitre, après quelques généralités sur les fluides à seuil, nous présenterons le choix et la caractérisation des matériaux modèles (le fluide à seuil) ainsi que la description du dispositif expérimental utilisé. La dernière partie est consacrée à la présentation et à l'analyse les résultats expérimentaux obtenus.

3.1 Matériau modèle

On appelle fluide à seuil un fluide possédant une structure interne de taille caractéristique mésoscopique, c'est-à-dire intermédiaire entre l'échelle moléculaire et la taille de l'échantillon. Cette mésostructure lui confère des propriétés intermédiaires entre celles du liquide simple et du solide élastique. Le fluide à seuil que nous cherchons à formuler doît être un matériau modèle, c'est-àdire ayant un comportement rhéologique simple, bien caractérisé, modulable et le plus possible représentatif des matériaux réels, utilisés par exemple dans le Génie Civil. Il devra également être transparent pour permettre la visualisation de la déformation de la bulle.

3.1.1 Généralité sur les fluides à seuil

Les fluides à seuil sont des matériaux qui ne s'écoulent que si on leur applique une contrainte qui est supérieure à la contrainte minimale appelée « contrainte seuil », notée τ_c . Des exemples de fluide à seuil que l'on trouve dans la vie de tous les jours sont la pâte dentifrice, la mayonnaise, le gel pour les cheveux...

Dans le cas où la contrainte appliquée au fluide est inférieure à cette contrainte seuil, il se comporte comme un solide viscoélastique. Si elle est supérieure au seuil de contrainte, le matériau s'écoule et a un comportement de liquide plastique visqueux. En plus de cette transition liquide/solide liée à l'existence d'une contrainte seuil, d'autres phénomènes peuvent compliquer le comportement des fluides à seuil comme la thixotropie, que nous cherchons à éviter dans cette étude.

3.1.2 Quelques comportements particuliers

Voici quelques exemples de comportements particuliers des fluides à seuil que l'on souhaite éviter :

3.1.2.1 Les fluides thixotropes

Les fluides thixotropes sont des matériaux dont la viscosité évolue au cours du temps quand on leur applique une contrainte (ou une vitesse de cisaillement) constante. Leurs caractéristiques rhéologiques dépendent donc du temps mais aussi de l'histoire du matériau et de la mise en place de l'échantillon (précisaillement, temps de repos,...).

Au repos, le fluide thixotrope se structure. Lorsque la contrainte appliquée au matériau est inférieure à sa contrainte seuil, son module élastique augmente au cours du temps. Quand la contrainte appliquée est supérieure à sa contrainte seuil, il s'écoule et sa viscosité évolue. S'il était dans un état initial très fluide, sa viscosité augmente et atteint à un état stationnaire. S'il était dans un état initial solide, sa viscosité diminue. Ce ne sont donc, du point de vue rhéologique, pas des fluides à seuil modèles.

Les matériaux thixotropes sont largement utilisés dans l'industrie comme par exemple le béton [2, 5, 48], la pâte de ciment, certaines peintures [22].

3.1.2.2 Emulsion floculée

Dans certaines conditions, les émulsions peuvent floculer. Ce phénomène est dû à l'agrégation réversible des gouttelettes sous l'effet de forces attractives. On peut distinguer deux mécanismes de floculation :

- Si la phase continue contient des macromolécules, elles vont s'adsorber sur la surface des gouttes et peuvent provoquer un pontage entre les gouttes et ainsi les réunir en flocs.
- Si la concentration en tensioactif est importante dans la phase continue, de nombreuses micelles vont être présentes en solution. Ceci va réduire le volume libre accessible par les gouttes de la phase dispersée et donc avoir tendance à les coller entre elles et ainsi former des flocs.

Des auteurs [7, 8] ont montré que le comportement rhéologique d'une émulsion floculée est très différent du comportement de la même émulsion non floculée. Il faudra donc apporter une attention toute particulière à la formulation des émulsions afin qu'elles ne soient pas floculées, pour qu'elles constituent un fluide à seuil modèle, au comportement rhéologique bien caractérisé.

3.1.3 Formulation de fluide à seuil modèle

La façon le plus simple de suivre la déformation de l'interface entre une bulle et le matériau est la visualisation directe ou sous microscope du système. Il faut donc que le fluide à seuil soit transparent, ce qui est une contrainte supplémentaire pour la formulation du matériau. D'après ce que nous avons vu précédement, il doît également être non thixotrope, et pour les émulsions, non floculées. Le gel de Carbopol et l'émulsion transparente non floculée semblent donc être deux bons candidats de fluide à seuil simple répondant à nos critères.

3.1.3.1 Solution de Carbopol

Le Carbopol est un polymère polyacrylique, de formule générique $(CH_2 - CH - COOH)_n$, qui se présente sous forme d'une poudre dont les particules ont un diamère variant de 2 à 20 μ m. Afin d'obtenir un gel de Carbopol, il suffit de dissoudre le poudre de Carbopol dans de l'eau, puis de neutraliser la solution avec un volume approprié d'hydroxyde de sodium (NaOH). La solution de Carbopol forme un milieu de masse volumique très proche du celle de l'eau, estimée à 0,985 kg/L et transparent, ce qui est un grand avantage expérimental. De plus, conservé dans des conditions standards, le Carbopol est un fluide à seuil très stable dans le temps et très peu thixotrope [32].

3.1.3.2 Emulsion

Il existe deux grands types d'émulsions : directes ou inverses. Les premières sont constituées de gouttelettes d'huile dispersées dans une phase continue aqueuse, tandis que les deuxièmes consistent en une assemblée de gouttelettes d'eau dispersées dans une phase continue d'huile. Les interfaces sont dans les deux cas stabilisées par des molécules amphiphiles (tensioactifs, polymères ou particules).

Une première étude réalisée au laboratoire [34] a montré que pour mélanger une émulsion et des bulles ou de la mousse, les deux fluides doivent avoir la même phase continue, c'est à dire une phase continue aqueuse. Nous avons donc utilisé des émulsions directes. De plus, il faut que la bulle soit stable et immobile dans le matériau au repos.

Des auteurs ont défini un critère de stabilité pour une bulle dans un fluide à seuil [28] : la contrainte seuil du matériau doit être supérieure aux forces de gravité. La formule qui exprime ce critère s'écrit :

$$\frac{\tau_c}{\rho g a} \ge \frac{1}{\sqrt{3}} \tag{3.1}$$

où *a* est le rayon de la bulle, *g* est l'accélération due à la gravité, τ_c est la contrainte seuil et ρ est la densité du fluide. Du coup, il nous faudra adapter le seuil du matériau à la taille de la bulle étudiée pour qu'elle soit stable au repos.

3.1.4 Méthode de préparation

3.1.4.1 Solution de Carbopol

Pour la préparation du gel de Carbopol, nous utilisons un malaxeur à mortier. Ce malaxeur nous permet de préparer en une seule fois jusqu'à 4 litres de fluide. Grâce à sa pale qui cisaille l'ensemble du volume de matériau, ce malaxeur planétaire nous fournit un mélange homogène. La vitesse de rotation choisie est de 90 tours par minute. Dans un premier temps, un volume approprié d'eau est mélangé pendant quelques minutes dans le malaxeur. Ensuite, une masse de poudre de Carbopol correspondant à la concentration massique désirée est introduite lentement et en pluie fine dans ce volume. Une fois la poudre incorporée dans sa totalité, l'agitation est prolongée durant trois heures minimum pour que toute la poudre soit hydratée et qu'il y ait plus de « grumeaux » (homogénéisation de la suspension). Après cette étape, la solution obtenue est acide et n'est pas encore un fluide à seuil. Une fois l'homgénéisation faite, en ajoutant rapidement un volume adéquat d'hydroxyde de sodium (NaOH) à 1mol/L à l'aide d'une seringue, nous obtenons une solution de pH neutre. Suite à cet ajout, la solution de Carbopol se « gélifie » . Les chaines de polymères se réticulent. Le malaxage continue p endant environ 24h afin d'obtenir une solution homogène.

Nous avons utilisé des solutions de Carbopol de concentration massique 0,15 % ce qui permet d'avoir du carbopol dont la contrainte seuil est autour de 25 Pa.

3.1.4.2 Emulsion directe transparente

Pour préparer une émulsion transparente, il faut adapter les indices optiques de la phase continue et de la phase dispersée. L'indice optique n d'un mélange de deux constituants d'indice optique différents n_1 et n_2 est donné par la formule suivante [41] :

$$n = x_1 n_1 + x_2 n_2 \tag{3.2}$$

où x_i est la fraction massique du constituant *i*, d'indice optique n_i .

En utilisant comme phase continue un mélange 50/50 massique d'eau et de glycérol, et comme phase dispersée de l'huile silicone, l'émulsion est transparente. En effet, $n_{\text{huile silicone}} = 1.44$, $n_{\text{eau}} = 1.33$, $n_{\text{glycérol}} = 1.47$, $n_{\text{phase continue}} = x_{\text{eau}}n_{\text{eau}} + x_{\text{glycérol}}n_{\text{glycérol}} = 1.4$. L'ajoute de tensioactif modifie un peu l'indice optique du mélange et permet d'obtenir une émulsion transparente.

L'émulsion doît se comporter comme un milieu continu. Il faut donc une séparation de taille entre le diamètre des gouttes de l'émulsion et celui de la bulle. Pour cela, il faut que l'émulsion se compose de petites gouttes (diamètres de 1 à 10 μ m) et soit relativement monodisperse. Nous avons donc utilisé la technique « émulsification par rupture de goutte » pour préparer l'émulsion [42]. Cette méthode consiste à préparer un prémélange « grossier » constitué de très grosses gouttes polydisperses, puis à le cisailler fortement dans un entrefer étroit afin de fractionner uniformément ces gouttes pour obtenir des gouttes plus petites et monodisperses.

Dans notre système, la phase continue est un mélange 50/50 massique d'eau et de glycérol et du tensioactif TTAB (bromure de tétradécyl- triméthylammonium). La masse du TTAB est égale à

3 % de celle de la phase aqueuse. Cette concentration en tensioactif est suffisante pour stabiliser les gouttes d'émulsion, et pas trop importante pour ne pas la floculer. La phase dispersée est une huile silicone dont la viscosité est 0,35 *Pa.s.* Le prémélange est préparé en ajoutant goutte-àgoutte l'huile à la phase continue et en agitant légèrement la solution à la spatule. Après avoir ajouté une quantité d'huile égale à la masse de phase continue, on peut verser plus rapidement de l'huile dans la solution en remuant régulièrement. Nous obtenons ainsi un prémélange grossier composé de grosses gouttes d'huile, très polydisperse.



FIGURE 3.1 – Schéma de l'émulsificateur Couette, d'après la référence [43].

Ensuite, afin d'obtenir une émulsion monodisperse avec de petites gouttes, nous utilisons l'émulsificateur Couette représenté par la figure 3.1 [43]. Cette machine est conçue pour préparer des émulsions constituées de gouttes de taille définie. Le principe du fonctionnement de la machine est de fractionner les grosses gouttes grâce à un fort taux de cisaillement $\dot{\gamma}$. Le prémélange est poussé à travers le gap stator/rotor avec le rotor en rotation grâce à une seringue motorisée. Il est possible de varier le gap entre le stator et le rotor (gap 100 μ m ou 200 μ m) ainsi que la vitesse de rotation. Dans notre cas, nous utilisons le gap 100 μ m et choisissons quatre vitesses de rotation : 150 rpm, 300 rpm, 450 rpm et 600 rpm (les taux de cisaillement correspondants sont respectivement 3550 s⁻¹, 7100 s⁻¹, 10650 s⁻¹ et 14200 s⁻¹). Nous avons étudié l'influence de deux paramètres : la fraction volumique en huile et le taux de cisaillement sur les propriétés des émulsions obtenues. Des émulsions à diverses teneurs en huile (entre 80 % et 93 %) ont été fabriquées. Pour chaque composition, nous avons fait varier la vitesse de rotation de l'émulsificateur ce qui revient à modifier la valeur du cisaillement imposé aux gouttes. Nous constatons que :

- une forte vitesse de rotation permet d'obtenir des émulsions plus monodisperses
- à composition donnée, l'indice de polydispersité est une fonction décroissante de la vitesse de

Fraction	Vitesse	Diamètre	Indice de	Module	Module	Seuil	η
volumique	de cisaillement	moyen	polydispersité	élastique	visqueux		
φ	$\dot{\gamma}$	a	U	G	G"	$ au_c$	
%	s^{-1}	μ m		Ра	Ра	Pa	$\operatorname{Pas}^{-0,5}$
80	3550	53,97	0,61	49,7	9,44	3,45	4,5
	7100	8,83	0,44	131,71	12,64	10,60	7
	10650	9,24	0,69	675,93	39,19	75,70	19
	14200	6,79	0,32	892,94	70,62	105,23	21
87	3550	18,77	0,74	209,71	12,52	25,44	12,5
	7100	6,97	0,32	443,97	24,03	53,89	16,50
	10650	5,21	0,23	667,37	39,29	83	19
	14200	4,43	0,24	916,09	71,36	107	23
89	7100	6,64	0,57	584,59	26,55	75	19
	10650	4,99	0,25	927,3	67,86	114	24
	14200	3,9	0,22	1429,48	145,56	143	28
91	7100	5,1	0,22	833,17	56,09	108,05	30
	10650	3,81	0,22	1291	133,19	185,77	36
	14200	3,44	0,24	1782,17	253,99	243,9	35
93	3550	3,46	0,22	1639,79	238,55	275,26	30
	7100	4,29	0,21	1261,12	115,63	200,04	26
	10650	7,02	0,39	560,49	38,65	85,76	18
	14200	3,12	0,20	1878,29	437,15	343,39	25

TABLE 3.1 – Récapitulatif des différentes émulsions préparées.

Système	Module	Module	Seuil	η	n
	élastique	visqueux			
	G	G"	$ au_c$		
	Ра	Pa	Pa	Pas^n	
Carbopol 1	143,66	28,72	21	5,51	0,42
Carbopol 2	222,86	157,24	33	10,24	0,39

TABLE 3.2 – Récapitulatif des solutions de Carbopol utilisées.

rotation

- une forte teneur en huile est également un élément qui permet d'obtenir une émulsion monodisperse.
- à vitesse de rotation fixe, l'émulsion est d'autant plus polydisperse que la fraction volumique en huile est faible.

De plus, la vitesse de rotation a également une influence sur la taille des gouttes générées : plus on cisaille intensèment, plus la taille des gouttes est petite. Cet effet est attendu puisqu'un fort cisaillement provoque la rupture des gouttes les plus grosses. Pour notre problème, nous constatons que nous avons réussi à formuler des émulsions monodisperses dont la taille des gouttes est comprise entre 3 et 5 μ m. Ces émulsions peuvent être considérées comme des matériaux homogènes pour des bulles de diamètres de l'ordre 100 μ m.

3.1.5 Caractérisation des matériaux modèles

Nous avons utilisé deux techniques pour caractériser les émulsions : la granulométrie laser et la rhéométrie.

3.1.5.1 Granulométrie

L'analyse granulométrique permet de caractériser la distribution de taille des gouttes dans l'échantillon. La distribution granulométrique est déduite de l'interaction entre un ensemble de particules et le faisceau laser incident par l'analyse de la tâche de diffraction du faisceau. La granulométrie donne accès au diamètre moyen des particules sphériques et à la polydispersité de l'échantillon.

La polydispersité d'une émulsion est caractérisée par l'uniformité U représentant la déviation moyenne au diamètre médian de la distribution U s'exprime en pourcentage [43] :

$$U = \frac{\sum_{i} V_{i} |d(v, 0.5) - d_{i}|}{\sum_{i} V_{i}} \frac{1}{d(v, 0.5)}$$
(3.3)

où V_i et d_i sont respectivement le volume et le diamètre de la *i*ème particule, d(v, 0.5) est le diamètre médian de la distribution granulométrique. Une émulsion sera considérée comme monodisperse si son indice de polydispersité U est inférieur à 20 % [43].

L'émulsion à étudier est diluée dans l'eau à laquelle on ajoute du tensioactif TTAB. L'ajout de

TTAB aide à stabiliser l'émulsion. En effet, en diluant l'émulsion dans l'eau, on diminue la concentration en tensioactif. Il faut donc s'assurer que les gouttes sont toujours stabilisées par du tensioactif pour éviter leur coalescence.



FIGURE 3.2 – Effet de la fraction volumique en huile sur la distribution granulométrique d'une émulsion, toutes les émulsions ont été cisaillées à $\dot{\gamma} = 10650 \text{ s}^{-1}$.



FIGURE 3.3 – Effet du cisaillement sur la distribution granulométrique d'une émulsion à fraction volumique constante (87 %).

La figure 3.2 représente l'effet de la fraction volumique en huile sur la distribution granulométrique de quatre émulsions (les fractions volumiques en huile φ_h sont respectivement 87 %, 89 %, 91 %, 93 %). Toutes les émulsions ont été cisaillées à $\dot{\gamma} = 10650 \text{ s}^{-1}$. On constate que pour un même taux de cisaillement, le diamètre moyen des gouttes dans l'émulsion décroît quand la fraction volumique augmente. La polydispersité des émulsions à 87 %, 89 % et 91 % en huile reste à peu près constante. Pour l'émulsion à $\varphi_h = 93$ %, la taille des gouttes est plus grande que les autres. On s'attendrait à avoir des gouttes plus petites que pour les autres émulsions, ce qui n'est pas le cas. A cette valeur de la fraction volumique en huile (93 %), l'émulsion est très visqueuse et s'échauffe beaucoup lors du cisaillement dans la cellule de Couette. On peut donc avoir du mûrissement ou de la coalescence entre les gouttes d'huile, ce qui a pour conséquence d'augmenter leur diamètre moyen. On se limitera donc à des fractions volumiques en huile inférieure à 91 % pour éviter ce problème.

L'effet du cisaillement sur la distribution granulométrique de l'émulsion à 87 % en huile est présenté sur la figure 3.3. On peut voir que pour une même fraction volumique, si le taux de cisaillement augmente, la taille des gouttes et la largeur des pics (et donc la polydispersité) diminuent. A 3550 s⁻¹, la distribution granulométrique est beaucoup plus large, avec la présence de très grosses gouttes car le cisaillement n'est pas suffisant pour fractionner de façon homogène les gouttes de l'émulsion.

En conclusion, pour avoir une émulsion avec de petites gouttes monodisperses, il faut avoir une fraction volumique en huile élevée et un fort taux de cisaillement lors du passage dans l'émulsificateur.

Nous avons également étudié la reproductibilité de la préparation d'émulsions. Nous avons effectué plusieurs prémélanges, de même composition, les avons cisaillés dans les mêmes conditions et comparé les résultats granulométriques obtenus. La figure 3.4 représente l'effet du cisaillement sur la distribution granulométrique de deux émulsions de la même fraction volumique (87 %) à la vitesse de 14200 s^{-1} . On peut voir que les distributions granulométriques se superposent. Cela démontre la reproductibilité de la préparation de nos émulsions, quelque soit le prémélange.

3.1.5.2 Rhéologie

Après avoir rappelé quelques notions de rhéologie (module élastique, module visqueux et contrainte seuil ainsi que les différents comportement d'écoulement des fluides [32, 40, 49]), nous présenterons les résultats obtenus pour nos émulsions.

La rhéologie consiste en l'étude de la déformation et de l'écoulement de la matière en fonction des efforts (contraintes) qui lui sont appliqués.

Les propriétés rhéologiques d'un fluide sont classiquement mesurées avec un rhéomètre rotatif. La géométrie est constituée d'une partie fixe (stator) et d'une partie mobile fixée à l'axe de rotation du rhéomètre (rotor). Les variables rhéologiques de contrôle du mouvement sont soit la vitesse de rotation de l'axe du rhéomètre ω , soit le couple Γ qui lui est appliqué. Dans les deux cas, l'échantillon de fluide est placé dans l'entrefer entre le stator et le rotor. Grâce au mouvement de l'axe de rotation du rhéomètre, l'échantillon est cisaillé. En pratique, les géométries les plus fréquemment utilisées sont la cellule de Couette, le cône-plan, le plan-plan [32]... Dans nos expériences, nous avons utilisé le rhéomètre C-VOR 200 de la marque Bohlin et la géométrie



FIGURE 3.4 – Reproductibilité de la préparation des émulsions : deux émulsions de même fraction volumique en huile (87 %) et même taux de cisaillement ($\dot{\gamma} = 14200 \text{ s}^{-1}$) obtenues à partir de deux prémélanges différents.

plan-plan. Elle est constituée de deux disques de même rayon r coaxiaux en rotation relative l'un par rapport à l'autre (voir figure (3.5)). Le disque inférieur est fixe alors que le disque supérieur tourne à la vitesse ω sous l'effet de l'application d'un couple Γ . Ces disques sont striés afin d'éviter le glissement du fluide à seuil. Les disques sont séparés par un entrefer d'épaisseur H. Cet appareil est utile si on a une faible quantité de fluide. Il permet également de régler l'entrefer à l'épaisseur souhaitée. Le taux de cisaillement n'est pas constant dans l'entrefer. Il est nul au centre et maximum à la périphérie. Sous ces conditions, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ s'écrit sous la forme suivante :

$$\dot{\gamma} = \frac{\omega r}{H} \tag{3.4}$$

Une des mesures utilisée en rhéométrie est la mesure en oscillation. Elle consiste à imposer à l'échantillon des oscillations à petites déformations et à mesurer sa réponse en contrainte. A partir de cette expérience, on peut mesurer le module élastique et le module visqueux. Si la déformation appliquée est sinusoïdale :

$$\gamma(t) = \gamma_0 \cos \omega t \tag{3.5}$$

avec γ_0 suffisamment faible pour que la réponse du matériau soit linéaire, la contrainte est proportionnelle à la déformation, avec un déphasage ϕ :

$$\tau(t) = \tau_0 \cos(\omega t + \phi) \tag{3.6}$$



FIGURE 3.5 – Géométrie plan-plan.

Les modules élastiques (ou de conservation) $G(\omega)$ et visqueux (ou de perte) $G''(\omega)$ sont définis par :

$$G(\omega) = \frac{\tau_0}{\gamma_0} \cos(\phi(\omega)) \tag{3.7}$$

$$G''(\omega) = \frac{\tau_0}{\gamma_0} \sin(\phi(\omega))$$
(3.8)

La réponse du matériau s'écrit sous la forme :

$$\tau(t) = \gamma_0[G(\omega)\cos(\omega t) - G''(\omega)\sin(\omega t)]$$
(3.9)

Si $G(\omega)$ et $G^{"}(\omega)$ sont non nuls, le matériau a un comportement viscoélastique, c'est-à-dire un comportement intermédiaire entre le solide élastique et le fluide visqueux :

– Si G > G", le matériau est viscoélastique mais plutôt élastique,

– Si G < G", le matériau est viscoélastique mais plutôt visqueux.

Un exemple de module élastique et de module visqueux de l'émulsion à 89 % d'huile formulée en appliquant un cisaillement de 7100 s⁻¹ mesurée avec la géométrie plan-plan est présenté sur la figure 3.6.

Pour mesurer la contrainte seuil du matériau, on applique un taux cisaillement très faible (de l'ordre de 10^{-2} s⁻¹) et on mesure l'évolution de la contrainte en fonction du temps. La valeur du plateau de la courbe nous donne la contrainte seuil τ_c . La figure 3.7 représente un exemple de mesure de la contrainte seuil d'une émulsion à 91 % d'huile.

La courbe d'écoulement est le lien entre le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ et la contrainte $\tau = f(\dot{\gamma})$ dans le matériau. Pour déterminer la courbe d'écoulement, on effectue les expériences rhéologiques qui consistent à appliquer des plateaux de cisaillement et à mesurer les contraintes correspondantes. On analyse ces expériences en faisant les hypothèses suivantes :

- 1. Le régime stationnaire est atteint,
- 2. l'écoulement est homogène,
- 3. il n'y a pas de glissement aux parois,



FIGURE 3.6 – Exemple de module élastique et module visqueux d'une émulsion contenant 87% d'huile.



FIGURE 3.7 – Exemple de contrainte seuil mesurée sur une émulsion contenant 91 % d'huile.

On obtient donc la relation $\tau = f(\dot{\gamma})$. Cette courbe permet de caractériser le comportement rhéologique du fluide à seuil. On peut énumérer quelques comportements non newtoniens : les fluides rhéofluidifiants, les fluides rhéoépaississants, les fluides à seuil.

 Les fluides rhéofluidifiants sont des matériaux dont la viscosité diminue quand le taux de cisaillement augmente.

- Les fluides rhéoépaississants sont des matériaux dont la viscosité augmente quand le taux de cisaillement augmente.
- Le comportement des fluides à seuil a été décrit en début de ce chapitre.

Les émulsions et le gel de Carbopol sont des exemples de fluide à seuil. La loi de Herschel-Bulkley permet de décrire l'écoulement de nombreux fluides à seuil.

Ces différents comportements rhéologiques sont représentés sur la figure (3.8).



FIGURE 3.8 – Différents comportement rhéologiques : (1) fluide newtonien, (2) fluide rhéoépaississant, (3) fluide rhéofluidifiant, (4) fluide de Bingham ou (5) fluide de Herschel-Bulkley avec n < 1.

La figure 3.9 représente la courbe d'écoulement du Carbopol 1. Sa loi de comportement en écoulement est du type de Herschel-Bulkley avec $\tau_c = 21, 31$ Pa, $\eta = 5, 50$ Pas^{-0,42} et n = 0, 42.

Les caractéristiques rhéologiques (τ_c et η) et granulométriques des émulsions que nous avons formulées sont résumées dans le tableau (3.1).

Toutes les émulsions que nous avons élaborées ont un comportement de type Herschel-Bulkley avec un indice plastique égal à 0.5. Si l'on ne s'intéresse qu'aux émulsions monodisperses constituées de petites gouttes, il est possible de faire varier les paramètres rhélogiques tels que : la contrainte seuil, les modules élastique et visqueux et le paramètre de consistance η en modifiant la taille des gouttes et la fraction volumique en huile. Pour nos matériaux, nous avons obtenu des valeurs du seuil comprises entre 80 et 350 Pa, du module élastique *G* comprises entre 650 et 1900 Pa, du module visqueux *G*ⁿ comprises entre 40 et 440 Pa.

L'ensemble des résultats montre que nous avons bien la possibilité de fabriquer des fluides à seuil modèles aux caractéristiques rhéologiques variées, de façon reproductible. En dispersant des bulles d'air de taille controlée dans ces matériaux, nous serons donc capables d'élaborer des suspensions de bulles dans des fluides à seuil. Dernier point, on observe que les valeur obtenues



FIGURE 3.9 – Exemple de courbe d'écoulement du Carbopol.

du seuil ici sont toujours supérieures à 80 Pa. En appliquant le critère de stabilité 3.1, on en déduit que toutes les bulles de rayon inférieur à approximativement 240 μ m seront stabilisées lorsqu'elle seront suspendues dans les émulsions. On constate également que les caractéristiques rhéologiques de l'émulsion à 80 % en huile et l'émulsion à 93 % en huile qui sont cisaillées à 10650 s⁻¹ ne semblent pas cohérentes avec les autres. Il faudrait effectuer d'autres expériences pour le vérifier.

3.2 Choix du dispositif expérimental

Dans cette partie, nons présenterons les quatre principaux dispositifs expérimentaux décrits dans la littérature pour cisailler une goutte/une bulle dans un fluide. La plupart des expériences présentées dans la littérature ont été réalisées avec une goutte ou une bulle placée dans un fluide newtonien visqueux.

- Dispositif de cisaillement à « quatre rouleaux »
- Dispositif de cisaillement à « bandes parallèles »
- Dispositif de cisaillement « plan-plan »
- Dispositif de cisaillement « cellule de Couette »

Les deux premiers dispositifs ont été utilisés pour la première fois par G.I.Taylor en 1930 [62]. Ces dispositifs ont déjà été présentés dans le chapitre 1.

3.2.1 Dispositif de cisaillement à « quatre rouleaux »

La figure 3.10 représente le dispositif de cisaillement à « quatre rouleaux ». Cet appareil se compose de quatre cylindres placés aux quatre coins d'un carré. Les cylindres sont entraînés par deux axes verticaux et des roues coniques. Ces deux arbres sont mis en rotation à la même vitesse mais en sens opposé par un moteur. L'ensemble est éclairé par une lampe et observé au moyen d'une caméra fixée avec son axe sur la ligne centrale dans une direction parallèle aux axes des cylindres.



FIGURE 3.10 – Dispositif de cisaillement à « quatre rouleaux », d'après Taylor [62].

Les lignes de courant créées par un tel dispositif sont représentées sur la figure 2.6. Il s'agit d'un écoulement purement élongationnel, et non pas un cisaillement simple, comme nous le souhaitons. On ne choisit donc pas le dispositif à « quatre rouleaux ».

3.2.2 Dispositif de cisaillement à « bandes parallèles »

La figure 2.6 représente le dispositif de cisaillement à « bandes parallèles » également proposé par Taylor [62]. Il est composé de deux bandes parallèles contre rotatives immergées dans un fluide. Les bandes sont lisses et constituées de films photographiques. Elles sont entraînées à la même vitesse en sens opposé. Pour que la goutte (ou la bulle) soit immobile, il faut qu'elle soit insérée exactement au milieu des deux bandes. La visualisation de la déformation de l'objet dans un tel dispositif est simple, elle se fait avec des méthodes optiques classiques : en utilisant des caméras ou par microscopie. Le seul inconvénient de ce dispositif est le positionnement initial de la goutte qui est délicat. Pour éviter ce problème, un dispositif plus évolué a été mis au point par Birkhofer et al. [9] où la distance entre les deux bandes et la vitesse des deux moteurs

peuvent être controlées indépendamment, ce qui permet de maintenir l'objet immobile quelque soit sa position en ajustant les vitesses de chacun des moteurs. En effet, si la relation $\frac{V_1}{V_2} = \frac{h_1}{h_2}$ est vérifiée, alors la goutte cisaillée sera immobile. V_1 et V_2 sont respectivement les vitesses de la bande 1 et de la bande 2, h_1 et h_2 sont respectivement la distance entre la bulle et la bande 1 et la distance entre la bulle et la bande 2.

Une version simplifiée du dispositif de Taylor (présentée sur la figure 3.11) a été utilisée par Rust et Manga [54] : le montage n'est constitué que d'une bande, l'objet à étudier est placé au centre. Comme pour le dispositif de Taylor, la goutte/bulle doit obligatoirement être placée au centre pour rester immobile pendant le cisaillement du fluide.



FIGURE 3.11 – Dispositif de cisaillement à « bandes parallèles », d'après la référence [54], a) Vue latérale, b) Vue de dessus.

Pour notre application, le seul inconvénient de ces systèmes est que les bandes sont lisses. Pour éviter le glissement aux parois avec des fluides complexes, il nous faut des bandes rugueuses.

3.2.3 Dispositif de cisaillement « plan-plan »

Une variante du dispositif à bandes parallèles a été proposée par S. Assighaou et L. Benyahia [3]. Dans ce cas, ce ne sont pas des bandes mais deux plans parallèles qui sont mis en rotation. La bulle/goutte peut être maintenue immobile quelque soit sa position entre les deux plaques en jouant sur leur vitesse de rotation relative. Un schéma du dispositif de cisaillement « plan-plan » est présenté sur la figure 3.12.

En pratique, le dispositif est constitué de deux disques. Chaque disque est contrôlé par un moteur de type brushless. Il existe également une autre configuration possédant un plateau fixe et un plateau mobile.

Dans le premier cas, la bulle/goutte peut être maintenue immobile mais les disques doivent être rugueux et transparents pour notre étude. La visualisation à travers des surfaces rugueuses (de type papier de verre, collage de billes) est difficile. Pour la seconde configuration, la bulle/goutte insérée est mobile et donc difficile à visualiser. Ce dispositif est a priori plus facile à réaliser



FIGURE 3.12 – Dispositif de cisaillement « plan-plan », d'après la référence [3].

mais il présente deux inconvénients majeurs. D'abord, il faut que les plans soient rugueux, ce qui empêche toute visualisation par dessus/dessous. En outre, si le cisaillement appliqué est grand, la goutte peut être éjectée. Une façon d'éviter ce dernier point est d'utiliser une géométrie de Couette.

3.2.4 Dispositif de cisaillement « cellule de Couette »

Le dispositif « cellule de Couette » a été proposé par Blaj et al. [10] (voir figure 3.13). Le fluide est placé dans l'entrefer de deux cylindres coaxiaux de rayon R1 et R2 avec R1 < R2 et de hauteur h tournant avec des vitesses angulaires respectives $\Omega1$ et $\Omega2$. Il existe également une configuration dans laquelle l'un des cylindres est fixe et l'autre tourne ce qui ne permet donc pas de maintenir l'objet immobile.

Pour placer une goutte dans l'entrefer, une seringue est insérée dans la fente à travers un orifice d'injection percé au fond de la cellule. Deux caméras sont utilisées. La première permet de localiser la bulle dans l'entrefer. La seconde est utilisée pour capturer les changements de forme de l'interface. Le fait que le cylindre externe soit courbée peut déformer l'image près de l'interface. Pour résoudre ce problème, Blaj et al. [10] proposent de placer la cellule de couette dans une cuve carrée remplie d'un fluide qui a la même indice optique que le PMMA. Le montage optique pour visualiser l'objet est alors plus complexe qu'une simple caméra, il est représenté sur la figure 3.13b.





La mise en œuvre du système optique pour la visualisation du cisaillement d'une goutte/bulle dans le dispositif « cellule de Couette » est donc plus compliquée.

3.2.5 Conclusion

En comparant les quatres dispositifs présentés précédemment, le système à deux bandes parallèles semble le plus adapté à notre étude. Il convient cependant d'utiliser des bandes rugueuses afin d'éviter le glissement aux parois, ce qui n'a pas encore été proposé dans la littérature. La conception, la fabrication et la mise au point d'un tel système représentant un investissement important, il a été décidé de réaliser dans un premier temps un dispositif de cisaillement à une seule bande pour valider les solutions techniques retenues. Par manque de temps, il n'a pas été possible de développer un dispositif à deux bandes durant ce travail.

3.3 Dispositif

3.3.1 Principe

Nous présentons dans ce paragraphe le dispositif expérimental développé par Pascal Moucheront au laboratoire Navier permettant d'étudier le cisaillement simple d'une bulle dans un fluide à seuil. Nous avons décidé de construire un dispositif du type à « bandes parallèles ». Notre dispositif s'inspire de celui de Taylor [62].

Une version simple du dispositif semblable à celle proposée par Rust et Manga (3.11) a été developpée. En outre, une fois les problèmes techniques réglés, on pourra facilement mettre une seconde bande afin de réaliser le dispositif souhaité. Notre dispositif est composé d'une bande rugueuse montée sur deux cylindres de même rayon ce qui permet de cisailler de façon uniforme un petit volume de fluide au centre de la bande. La bulle est insérée au centre et la visualisation de la déformation de l'objet se fait au moyen d'une caméra. Par contre, nous avons modifié quelques éléments du dispositif pour qu'il soit adapté à nos études.

3.3.2 Mise au point

Le dispositif de Rust et Manga [54] est enfermé dans un réservoir transparent qui n'a pas de couvercle. Il existe une distance entre la bande et le fond du reservoir ainsi qu'entre la bande et le niveau du fluide ce qui nécessite un grand volume de fluide pour remplir le dispositif. Dans notre cas, on veut réduire autant que possible la quantité de fluide à seuil à utiliser. On va donc chercher à diminuer la distance entre la bande et les plaques supérieure et inférieure. On choisit les dimensions du dispositif de façon à ce que la quantité du fluide contenu dans le dispositif n'excède pas 0.5 litre (capacité maximale de production de l'émulsificateur). Les plaques sont en PMMA transparentes pour faciliter la visualisation de la goutte/bulle insérée dans le dispositif. La bande est une boucle de film polyester de 40 mm de largeur. Elle est tendue entre une roue de guidage et une roue dentée dont des dents coincident avec les perforations du film. Les roues sont en PVC. Loin des roues, un écoulement de cisaillement simple est produit par le déplacement de la bande. On peut faire varier la vitesse de la bande de 5 mm/s à 210 mm/s. Une vue éclatée du dispositif est représentée sur la figure (3.14).

Deux pièces (123-02-04 sur la figure (3.15)) ont été utilisées pour limiter les problèmes de recirculation du fluide au niveau des roues et ainsi ne pas perturber l'écoulement dans la zone où sera insérée la bulle. Les expériences sont enregistrées grâce à une caméra numérique, avec une vitesse d'acquisition de 3 images par seconde. Afin d'avoir des images les plus nettes possibles, le dispositif est éclairé avec un écran lumineux (éclairage homogène) et il est placé sous un drap noir pour éviter d'avoir des variations de luminosité à cause des éclairages de la salle de laboratoire. La prise d'images, ainsi que le contrôle de la vitesse de la bande sont pilotés par un ordinateur. Les déformations de la bulle au cours du cisaillement (taille, forme, orientation) sont mesurées grâce au logiciel ImageJ. Un exemple d'analyse d'une des image de nos expériences est montré sur la figure (3.16). Le contrôle de l'éclairage est très important pour avoir des images facilement analysables avec le logiciel.



FIGURE 3.14 – (a) Dispositif de cisaillement d'une bulle dans un fluide fabriqué au laboratoire ; (b) Image d'une bulle déformée sous un cisaillement simple dans une expérience au laboratoire.

3.3.3 Procédure expérimentale

La mise au point de la procédure expérimentale a été réalisée avec un gel de Carbopol, matériau beaucoup plus simple à préparer que les émulsions transparentes.

Le dispositif est précautionneusement rempli avec le Carbopol, en faisant attention de ne pas introduire de bulles d'air. Les quelques bulles d'air piègées dans le fluide lors de cette étape sont otées une à une en utilisant une pipette. Une bulle d'air, de volume contrôlé, est alors injectée grâce à une micropipette. Le volume des bulles étudiées varie entre 5 et 22 μ l. La bulle est photographiée après introduction et son rayon est alors mesuré par analyse d'image. Le volume correspondant est alors calculé. Il y a un écart entre le volume d'air théoriquement injecté et celui calculé, d'environ 10%. Cette différence s'explique par le fait que lorsque la micropipette est retirée du Carbopol un petit volume d'air reste attaché à l'embout de la micropipette.

Deux carbopol ont été utilisés comme fluide à seuil suspendant. L'appareil est ensuite mis en mouvement à une vitesse choisie. Nous avons choisi deux vitesses de cisaillement : 5 mm/s et 20 mm/s qui correspondent respectivement à un taux de cisaillement de $0,25 \text{ s}^{-1}$ et 1 s^{-1} . La caméra est démarrée en même temps que le moteur de l'appareil. L'expérience est poursuivie jusqu'à la



FIGURE 3.15 – Quelques éléments du dispositif à « Bandes Parallèles » fabriqué au laboratoire.





sortie de la bulle du champ de la caméra.

3.3.4 Résultats expérimentaux

Faute de temps, seules des expériences avec du Carbopol ont pu être réalisées. Afin d'étudier la relation entre la géométrie de la bulle et le nombre capillaire Ca, nous recensons les données à partir des expériences pour 5 tailles de bulle dont le volume varie entre 5 et 22 μ l. Quatre des bulles sont soumises à un taux de cisaillement de $0,25 \text{ s}^{-1}$. La dernière est soumise à un taux de cisaillement de 1 s^{-1} . Les gels de Carbopol semblent avoir presque la même valeur de tension de surface quelque soit leur seuil. La tension de surface entre l'air et le carbopol utilisé pour nos expériences est estimée à 0,066 N/m [12]. Les caractéristiques des bulles sont résumées dans le tableau (3.3). Le nombre capillaire Ca qu'on présente dans ce tableau est défini par :

$$Ca = \frac{\mu \dot{\gamma}}{\sigma/a} \tag{3.10}$$

L'orientation induite par l'écoulement de la bulle est décrite par l'angle θ . C'est l'angle entre l'axe principal (aussi appelé l'axe majeur) de la bulle et la direction de cisaillement. L et B sont respectivement la grande longueur et la petite dimension de la bulle déformée. L'amplitude de la déformation de la bulle est quantifiée par un paramètre sans dimension D = (L - B)/(L + B). Les déformations des bulles en fonction du nombre capillaire Ca sont représentées sur la figure (3.18).

Tout d'abord nous avons étudié la reproductibilité des expériences de cisaillement d'une bulle suspendue dans un fluide à seuil. Pour chaque taille de bulle, nous avons fait au moins trois expériences dans les mêmes conditions (avec un Carbopol de même contrainte seuil, soumis à un écoulement de même taux de cisaillement). La figure (3.17) représente l'orientation θ de la bulle en fonction du temps et l'évolution du paramètre adimensionné D en fonction du temps pour trois bulles de rayon 1,68 mm, chaque bulle est cisaillée à 0,25 s⁻¹ dans un carbopol dont le seuil est 21 Pa. Nous pouvons voir que pendant les cinquante premières secondes de l'expérience, le paramètre de déformation adimensionné D augmente rapidement et l'orientation θ décroît, ce qui montre que la bulle ne cesse de se déformer. Pendant environ les cinquantes secondes suivantes, les paramètres D et θ varient régulièrement. Après ce stade, D et θ varient légèrement et atteignent un régime stationnaire, la bulle ne se déplace plus et accède à une configuration stable. Nous trouvons que les trois courbes sont semblables et que les courbes se superposent presque. Cela démontre la reproductibilité de nos expériences de cisaillement.

Les orientations des bulles soumises à un cisaillement simple quantifiées par l'angle θ en fonction du nombre capillaire Ca sont présentées sur la figure (3.18). Nous constatons que pour le même taux de cisaillement, l'angle θ de la bulle diminue quand la taille de la bulle et le nombre capillaire Ca augmentent.

Pour $Ca \ll 1$, Rallison [51] prédit pour une bulle suspendue dans un fluide visqueux :

$$\theta = \frac{\pi}{4} - 0,6Ca \tag{3.11}$$

Cette fonction est tracée en trait plein de couleur noire. Nous voyons qu'elle reproduit bien la tendance du comportement d'une bulle étudiée expérimentalement. Les résultats obtenus sur les

ſ	Système	Contrainte	Rayon	Taux de	L'angle	L'axe	L'axe	L'angle	D	Nombre
	d'expérience	seuil	de bulle	cisaillement	θ	majeur	mineur	θ		capillaire
		Pa	mm	s^{-1}		mm	mm			Ca
	Carbopol 1	21	1,06	0,25	27,00	2,45	1,55	27,00	0,22	0,19
	Carbopol 1	21	1,53	0,25	25,00	4,71	2,04	25,00	0,39	0,28
	Carbopol 1	21	1,68	0,25	16,75	4,57	2,24	16,75	0,34	0,31
	Carbopol 1	21	1,68	1,00	15,59	4,79	2,15	15,59	0,38	0,34
	Carbopol 2	33	1,73	0,25	8,21	6,09	1,77	8,21	0,54	0,32

TABLE 3.3 - Récapitulatif des différentes bulles cisaillées dans du carbopol



FIGURE 3.17 – (a) Reproductibilité de l'orientation θ de la bulle en fonction du temps pour trois bulles de rayon 1,68 mm; (b) Reproductibilité du paramètre de déformation adimensionné, D = (L - B)/(L + B) en fonction du temps pour trois bulles de rayon 1,68 mm. Chaque bulle est cisaillée à 0,25 s⁻¹ dans un carbopol dont le seuil est 21 Pa.



FIGURE 3.18 – Relation entre les paramètres de déformation de la bulle et le nombre capillaire : (a) $\theta(Ca)$; (b) D(Ca).

systèmes avec $Ca \sim 0, 1 - 0, 35$ montre que l'angle θ en fonction de Ca d'une bulle cisaillée dans un fluide à seuil décroit plus rapidement que celui d'une bulle cisaillée dans un fluide visqueux newtonien.

La relation entre le paramètre sans dimension D et le nombre capillaire Ca pour les bulles soumises à un cisaillement simple est présentée sur le graphique (b) de la figure (3.18). La ligne noire décrit l'estimation théorique de Taylor [62], $D \simeq Ca$ pour le cas où Ca est petit. Nous voyons que pour le même taux de cisaillement, le paramètre D augmente quand la taille des bulles et le nombre capillaire Ca augmente. On trouve que l'estimation de Taylor pour la déformation d'une bulle dans un fluide visqueux newtonien n'est pas vraiment adaptée au cas d'une bulle dans un fluide à seuil.
Chapitre 4

Homogénéisation

Dans ce chapitre, nous développons une approche par changement d'échelle afin d'étudier le comportement macroscopique d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil. Tout d'abord, nous étudions le problème d'une bulle sphérique immergée dans un milieu infini en partant de la solution établie par Palierne [50]. La solution du problème sera utilisée ensuite pour généraliser les approches « classiques » de l'homogénéisation des milieux hétérogènes au comportement linéaire, à savoir le schéma dilué, le schéma de Mori-Tanaka et le schéma autocohérent. Puis nous présentons une approche par motif morphologique. Ensuite nous nous intéressons au comportement d'une suspension de bulles dans un fluide de Herschel-Bulkley. Nous utilisons l'approche par sécante modifiée pour obtenir les estimations des caractéristiques macroscopiques de la suspension dans la situation isotrope.

4.1 Bulle sphérique dans un milieu infini

On considère le problème d'une bulle d'air de forme sphérique de rayon a, immergée dans un milieu occupant un domaine infini Ω constitué d'un matériau élastique linéaire isotrope (module de cisaillement G, module de compressibilité k, second cœfficient de Lamé λ). On note I le domaine occupé par la bulle. Cette structure est soumise à un chargement en déformation homogène loin de la bulle. Aucune force à distance n'est appliquée sur le système.

On s'intéresse à la situation où il n'y a pas de contrainte dans le matériau de la matrice avant l'application du chargement (hypothèse de l'état initial naturel). L'interface entre la matrice et le gaz est une interface capillaire où il règne une tension de surface σ uniforme. Pour que cette interface soit à l'équilibre, il est nécessaire que la pression à l'intérieur de la bulle dans la configuration initiale soit égale à $2\sigma/a$ (loi de Laplace).

Dans l'état initial, les efforts intérieurs dans le système vérifient donc les équations suivantes :

$$\boldsymbol{\sigma}_0(\underline{x}) = 0 \qquad \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega \backslash I) \qquad (4.1a)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_0(\underline{x}) = -p_0 \boldsymbol{\delta} = -\frac{2\sigma}{a} \boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \ \underline{x} \in I)$$
(4.1b)

$$\llbracket \boldsymbol{\sigma}_0 \rrbracket \cdot \underline{N} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{B} \underline{N} = \underline{0} \qquad (\forall \underline{x} \in \partial I) \qquad (4.1c)$$

div
$$\boldsymbol{\sigma}_0 = \underline{0}$$
 $(\forall \underline{x} \in \Omega)$ (4.1d)

où σ_0 désigne le champ de contrainte de Cauchy dans la configuration initiale et δ le tenseur identité du second ordre. L'équation (4.1c) traduit l'équilibre de l'interface capillaire. Dans cette équation, on a :

- $[\![\sigma_0]\!]$: le saut de contrainte à la traversée de l'interface avec <u>N</u> le vecteur normal unitaire extérieur à la bulle,
- B: le tenseur courbure de l'interface capillaire dans l'état initial. Pour une sphère de rayon a orienté par <u>N</u>, on a tr $B = -\frac{2}{a}$.

(4.1d) est l'équation d'équilibre sans force de volume. Elle est vérifiée dans la matrice et dans la bulle.

Lorsqu'il est soumis au chargement uniforme en déformation appliqué à l'infini, le système se déforme. On désigne par $\underline{\xi}$ le champ de déplacement solution, ε le champ de déformation associé et σ le champ de contrainte dans la configuration déformée. Ces quantités sont solutions des équations :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x} \qquad (|\underline{x}| \to \infty) \tag{4.2a}$$

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = 2G\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) + \lambda \operatorname{tr} \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega \setminus I) \qquad (4.2b)$$

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = -\frac{2\sigma}{a}\boldsymbol{\delta} + k_g \frac{\delta V_b}{V_b}\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \ \underline{x} \in I)$$
(4.2c)

$$\llbracket \boldsymbol{\sigma} \rrbracket \cdot \underline{n} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{b} \underline{n} = \underline{0} \qquad (\forall \underline{x} \in \partial I) \qquad (4.2d)$$

div
$$\boldsymbol{\sigma} = \underline{0}$$
 $(\forall \underline{x} \in \Omega)$ (4.2e)

L'équation (4.2c) exprime le comportement du gaz contenu dans la bulle. Comme on s'intéresse ici uniquement aux positions d'équilibre du système, les efforts intérieurs dans la bulle sont du type pression. Le cœfficient k_g désigne le cœfficient de compressibilité du gaz à la pression p_0 défini par la relation $\frac{\delta V_b}{V_b} = -\frac{\delta p}{k_g}$ avec V_b le volume de la bulle dans la configuration initiale, δV_b la variation de volume de la bulle et δp la variation de la pression du gaz contenu dans la bulle due à l'application du chargement E. (4.2d) est l'équation d'équilibre de l'interface capillaire avec <u>n</u> le vecteur normal unitaire extérieur à la bulle et **b** le tenseur courbure de l'interface capillaire dans la configuration déformée.

Compte tenu de la symétrie sphérique du problème la résolution du problème défini par les équations (1.1) et (1.2) dans le cas général s'obtient à partir de la solution pour une compression

isotrope $E = E\delta$ et de la solution pour un cisaillement pur $E = E(\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y)$. On cherche donc maintenant les solutions de ces deux problèmes.

4.1.1 Chargement en compression isotrope

Les calculs de cette section sont effectués en utilisant un système de coordonnées sphériques d'origine le centre de la bulle.

La condition (4.2a) s'écrit dans ce cas :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x} = Er\underline{e}_r \qquad (r \to \infty) \tag{4.3}$$

On cherche le déplacement dans la matrice, solution du problème sous la forme :

$$\underline{\xi} = (Er + \frac{C}{r^2})\underline{e}_r \tag{4.4}$$

où C est un réel inconnu. Comme la bulle reste sphérique dans la configuration déformée, on a $\underline{n} = \underline{e}_r$ dans l'équation (4.2d).

On calcule la déformation dans la matrice en utilisant la relation :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{2} (\operatorname{grad} \underline{\xi} + {}^{t} \operatorname{grad} \underline{\xi}) \tag{4.5}$$

où grad désigne l'opérateur gradient. En utilisant la relation (4.5) et les équations de comportement (4.2b) et (4.2c), on obtient dans l'inclusion :

$$\boldsymbol{\sigma} = 3k_g (E + \frac{C}{a^3})\boldsymbol{\delta} - \frac{2\sigma}{a}\boldsymbol{\delta}$$
(4.6)

et dans la matrice :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = (E - \frac{2C}{r^3})\underline{e}_r \otimes \underline{e}_r + (E + \frac{C}{r^3})(\underline{e}_{\theta} \otimes \underline{e}_{\theta} + \underline{e}_{\varphi} \otimes \underline{e}_{\varphi})$$
(4.7a)

$$\boldsymbol{\sigma} = (2G(E - \frac{2C}{r^3}) + 3\lambda E)\underline{e}_r \otimes \underline{e}_r + (2G(E + \frac{C}{r^3}) + 3\lambda E)(\underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\varphi \otimes \underline{e}_\varphi)$$
(4.7b)

La relation de continuité du déplacement radial à la traversée de l'interface capillaire impose :

$$\underline{\xi}_r(a) = \delta a = Ea + \frac{C}{a^2} \tag{4.8}$$

On en déduit que la trace du tenseur de courbure de l'interface capillaire dans la configuration déformée s'écrit au premier ordre :

$$\operatorname{tr} \boldsymbol{b} = -\frac{2}{a} + \frac{2\delta a}{a^2} \tag{4.9}$$

et que la variation de volume de la bulle est égale au premier ordre à :

$$\delta V_b = 4\pi a^2 \delta a \tag{4.10}$$

En reportant les équations (4.6), (4.7b) et (4.9) dans l'équation d'équilibre de l'interface capillaire (4.2d), on obtient :

$$2G(E - \frac{2C}{a^3}) + 3\lambda E - 3k_g(E + \frac{C}{a^3}) + \frac{2\sigma}{a}\frac{\delta a}{a} = 0$$
(4.11)

En combinant (4.8) et (4.11), on a donc

$$C = a^3 \frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}}E$$
(4.12)

ce qui détermine complètement la solution. On a donc :

$$\boldsymbol{\sigma} = 3k_g \frac{3k + 4G}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}} E\boldsymbol{\delta} - \frac{2\sigma}{a}\boldsymbol{\delta}$$
(4.13)

dans le gaz et :

$$\boldsymbol{\sigma} = (3k - 4G\frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}}\frac{a^3}{r^3})E\underline{e}_r \otimes \underline{e}_r$$
$$+ (3k + 2G\frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}}\frac{a^3}{r^3})E(\underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\varphi \otimes \underline{e}_\varphi)$$
(4.14a)

$$\varepsilon = (1 - 2\frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}}\frac{a^3}{r^3})E\underline{e}_r \otimes \underline{e}_r$$

$$+ (1 + \frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}}\frac{a^3}{r^3})E(\underline{e}_{\theta} \otimes \underline{e}_{\theta} + \underline{e}_{\varphi} \otimes \underline{e}_{\varphi}) \qquad (4.14b)$$

$$2\sigma$$

$$\underline{\xi} = E\left(r + \frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}} \frac{a^3}{r^2}\right)\underline{e}_r \tag{4.14c}$$

dans la matrice.

Pour la suite, on a besoin de calculer les grandeurs $\langle \varepsilon \rangle_b$ et $\langle \sigma \rangle_b$ où *b* désigne la bulle, c'est-à-dire le système matériel « gaz + interface capillaire ».

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b = \frac{1}{|I|} \int_I \boldsymbol{\varepsilon} d\Omega = \frac{1}{|I|} \int_{\partial I} \underline{n} \otimes_s \underline{\xi} dS$$
 (4.15)

où $\underline{n} \otimes_s \underline{\xi} = \frac{1}{2}(\underline{n} \otimes \underline{\xi} + \underline{\xi} \otimes \underline{n})$ désigne la partie symétrique de $\underline{n} \otimes \underline{\xi}$. Le système « gaz + interface capillaire » étant à l'équilibre, on montre que l'on a :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b = \frac{1}{|I|} \int_I \boldsymbol{\sigma} d\Omega = \frac{1}{|I|} \int_{\partial I} \underline{x} \otimes \boldsymbol{\sigma}^+ \underline{n} dS$$
 (4.16)

où σ^+ désigne le tenseur de la contrainte dans la matrice. On obtient :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b = \frac{3k + 4G}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}} E \boldsymbol{\delta}$$
 (4.17)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b = (3k - 4G \frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a}}) E \boldsymbol{\delta}$$
 (4.18)

En posant :

$$U_{b}^{c} = \frac{3k + 4G}{4G + 3k_{g} - \frac{2\sigma}{a}}$$
(4.19)

$$V_{b}^{c} = 3k - 4G \frac{3k - 3k_{g} + \frac{2\sigma}{a}}{4G + 3k_{g} - \frac{2\sigma}{a}}$$
(4.20)

on réécrit $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b$ et $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b$ sous la forme :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b = U_b^c E \boldsymbol{\delta}$$
 (4.21)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b = V_b^c E \boldsymbol{\delta}$$
 (4.22)

4.1.2 Chargement en cisaillement pur

La condition (4.2a) s'écrit maintenant :

$$\underline{\xi} \to E(\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y) \cdot \underline{x} \qquad (|\underline{x}| \to \infty)$$
(4.23)

Dans ce paragraphe, on se place dans le système de coordonnées sphériques pour effectuer les calculs.

Comme dans l'article de Christensen et al. [21], on cherche la solution du problème sous la forme :

$$\underline{\xi} = \xi_r \underline{e}_r + \xi_\theta \underline{e}_\theta + \xi_\varphi \underline{e}_\varphi \tag{4.24}$$

avec

$$\xi_r = u_r \sin^2 \theta \cos 2\varphi \tag{4.25a}$$

$$\xi_{\theta} = v_{\theta} \sin \theta \cos \theta \cos 2\varphi \tag{4.25b}$$

$$\xi_{\varphi} = v_{\varphi} \sin \theta \sin 2\varphi \tag{4.25c}$$

et

$$u_r = A_1 r + A_2 r^3 + \frac{A3}{r^4} + \frac{A_4}{r^2}$$
(4.26a)

$$v_{\theta} = B_1 r + B_2 r^3 + \frac{B_3}{r^4} + \frac{B_4}{r^2}$$
(4.26b)

$$v_{\varphi} = -v_{\theta} \tag{4.26c}$$

Les constantes B_i sont reliées aux constantes A_i par les relations :

$$B_1 = A_1 \tag{4.27a}$$

$$B_2 = \frac{1}{3} \frac{\frac{11}{3}G + 5k}{k - \frac{2}{3}G} A_2$$
(4.27b)

$$B_3 = -\frac{2}{3}A_3 \tag{4.27c}$$

$$B_4 = \frac{2G}{3G + 3k} A_4 \tag{4.27d}$$

 A_1 , A_2 , A_3 et A_4 sont des inconnues dépendant de la valeur de la tension de surface σ , des caractéristiques élastiques de la matrice (G, k) et de la taille de la bulle a. La condition à l'infini (4.23) impose $A_1 = E$ et $A_2 = 0$. On a donc :

$$u_r = Er + \frac{A_3}{r^4} + \frac{A_4}{r^2} \tag{4.28a}$$

$$v_{\theta} = Er + \frac{B_3}{r^4} + \frac{B_4}{r^2}$$
(4.28b)

La variation du volume de la bulle au cours de la transformation pour la famille de champ de déplacements considérée est nulle. On a en effet :

$$\delta V_b = \int_{\partial I} \xi_r(a) dS = \int_{\theta=0}^{\theta=\pi} \int_{\varphi=0}^{\varphi=2\pi} a^3 u_r(a) \sin^3 \theta \cos 2\varphi d\theta d\varphi = 0$$
(4.29)

On calcule ensuite les contraintes dans la matrice. On vérifie que pour les champs de déplacement de la forme (4.24), l'équation d'équilibre (4.2e) est toujours vérifiée.

Comme dans le paragraphe précédent, on calcule la moyenne de la contrainte $\langle \sigma \rangle_b$ et de la déformation $\langle \varepsilon \rangle_b$ dans la bulle. On est toujours dans le cas où la bulle est considérée comme un système « gaz + interface capillaire ». Dans ce cas, on calcule ces grandeurs en utilisant les formules (4.15), (4.16). Il reste à écrire les conditions d'équilibre de l'interface capillaire. Dans l'hypothèse des petites perturbations, cette équation s'écrit :

$$\left[\!\left[\boldsymbol{\sigma}\right]\!\right]_{r=a} \cdot \underline{e}_r + \sigma \mathrm{tr} \, \boldsymbol{b} \underline{e}_r = 0 \tag{4.30}$$

avec :

avec : - tr \boldsymbol{b} = tr \boldsymbol{B} + δ tr \boldsymbol{B} = $-\frac{2}{a}$ + δ tr \boldsymbol{B} où δ tr \boldsymbol{B} désigne la variation au premier ordre de la trace du tenseur courbure. On montre que :

$$\delta \operatorname{tr} \boldsymbol{B} = -2\left(\frac{2}{a} + \frac{2A_3}{a^6} + \frac{2A_4}{a^4}\right)\sin^2\theta\cos 2\varphi \tag{4.31}$$

- Comme la variation du volume de la bulle est nulle dans la transformation, la contrainte dans la bulle dans la configuration déformée est égale à $-\frac{2\sigma}{\sigma}\delta$.

En reportant l'équation (4.24) dans les équations(4.2b) et (4.5), on calcule le tenseur de contrainte dans la matrice. En reportant tous ces résultats dans l'équation (4.30), on obtient une équation vectorielle dont la résolution fournit la valeur des deux constantes A_3 et A_4

$$A_{3} = -\frac{3(6k+2G+3\frac{\sigma}{a})a^{5}G}{18Gk+16G^{2}+24G\frac{\sigma}{a}+15k\frac{\sigma}{a}}$$
(4.32a)

$$A_4 = -\frac{15(G\frac{\sigma}{a} + k\frac{\sigma}{a} - 2G^2 - 2Gk)a^3}{18Gk + 16G^2 + 24G\frac{\sigma}{a} + 15k\frac{\sigma}{a}}$$
(4.32b)

ce qui achève la résolution du problème

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b = \frac{30Gk + 9k\frac{\sigma}{a} + 40G^2 + 12G\frac{\sigma}{a}}{18Gk + 16G^2 + 24G\frac{\sigma}{a} + 15k\frac{\sigma}{a}} E(\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y)$$
(4.33a)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b = \frac{16(3k+4G)G^{\frac{\sigma}{a}}}{18Gk+16G^2+24G\frac{\sigma}{a}+15k\frac{\sigma}{a}}E(\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y)$$
(4.33b)

En posant :

$$U_b^s = \frac{30Gk + 9k\frac{\sigma}{a} + 40G^2 + 12G\frac{\sigma}{a}}{18Gk + 16G^2 + 24G\frac{\sigma}{a} + 15k\frac{\sigma}{a}}$$
(4.34)

$$V_b^s = \frac{16(3k+4G)G^{\frac{\sigma}{a}}}{18Gk+16G^2+24G\frac{\sigma}{a}+15k\frac{\sigma}{a}}$$
(4.35)

on réécrit $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b$ et $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b$ sous la forme :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b = U_b^s E(\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y)$$
 (4.36)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b = V_b^s E(\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y)$$
 (4.37)

Compte tenu de la symétrie sphérique du problème on a évidenmment la même relation pour des sollicitations de cisaillement $E(\underline{e}_y \otimes \underline{e}_y - \underline{e}_z \otimes \underline{e}_z)$ et $E(\underline{e}_z \otimes \underline{e}_z - \underline{e}_x \otimes \underline{e}_x)$.

On calcule alors les grandeurs $\langle \varepsilon \rangle_b$ et $\langle \sigma \rangle_b$. À partir des équations (4.21), (4.22), (4.36) et (4.37) et en utilisant le principe de superposition, on trouve que la solution du problème général défini par les équations (1.1) et (1.2) s'écrit donc :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_b = \mathbb{U}_b : \boldsymbol{E}$$
 (4.38)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_b = \mathbb{V}_b : \boldsymbol{E}$$
 (4.39)

avec

$$\mathbb{U}_b = U_b^c \mathbb{J} + U_b^s \mathbb{K} \tag{4.40}$$

$$\mathbb{V}_b = V_b^c \mathbb{J} + V_b^s \mathbb{K} \tag{4.41}$$

où les tenseurs \mathbb{J} et \mathbb{K} représentent les projections sur les parties sphériques et déviatoriques dans l'espace des tenseurs symétriques du second ordre.

Ensuite, il est possible d'identifier les relations (4.38) à (4.41) à des relations pour une inclusion sphérique équivalente de caractéristiques bien choisies. Pour cela, on considère maintenant le problème d'une inhomogénéité sphérique constituée d'un matériau à comportement élastique linéaire isotrope (de module \mathbb{C}_I , de caractéristique G_I^{eqvt} et k_I^{eqvt} , noyée dans une matrice dont le comportement est élastique linéaire isotrope (de module \mathbb{C}_m , de caractérisiques G et k) soumise à l'infini un chargement de type déformation homgène E. La solution de ce problème vérifie les équations :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x} \tag{(|\underline{x}| \to \infty)} \tag{4.42a}$$

$$\sigma(\underline{x}) = \mathbb{C}_m : \varepsilon(\underline{x}) \tag{4.42b}$$

$$\sigma(\underline{x}) = \mathbb{C}_m : \varepsilon(\underline{x}) \tag{4.42b}$$

$$\sigma(\underline{x}) = \mathbb{C}_I : \varepsilon(\underline{x}) \tag{4.42c}$$

$$\| \boldsymbol{\sigma} \| \cdot \underline{n} = \underline{0} \qquad \| \underline{\xi} \| = \underline{0} \qquad (\forall \underline{x} \in \partial I)$$
 (4.42d)

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = \underline{0} \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega) \qquad (4.42e)$$

En partant de la solution du problème d'inhomogénéité d'Eshelby, on montre que le champ de déformation solution est uniforme dans l'inclusion et dépend linéairement du chargement E:

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) = \left(\frac{1}{1 + \frac{\beta_0(G_I^{eqvt} - G)}{G}}\mathbb{K} + \frac{1}{1 + \frac{\alpha_0(k_I^{eqvt} - k)}{k}}\mathbb{J}\right) : \boldsymbol{E} \qquad (\forall \ \underline{x} \in I)$$
(4.43)

avec

$$\alpha_0 = 3\frac{k}{3k+4G} \tag{4.44a}$$

$$\beta_0 = \frac{6(k+2G)}{5(3k+4G)}$$
(4.44b)

En résolvant les deux équations :

$$U_{c}^{b} = \frac{1}{1 + \frac{\alpha_{0}(k_{I}^{eqvt} - k)}{k}}$$
(4.45a)

$$U_{s}^{b} = \frac{1}{1 + \frac{\beta_{0}(G_{I}^{eqvt} - \mu)}{\mu}}$$
(4.45b)

on obtient alors G_I^{eqvt} et k_I^{eqvt} :

$$G_I^{eqvt} = \frac{8G\frac{\sigma}{a}}{3\frac{\sigma}{a} + 10\mu}$$
(4.46a)

$$k_I^{eqvt} = k_g - \frac{1}{3} \frac{2\sigma}{a} \tag{4.46b}$$

4.2 Homogénéisation

Dans de nombreuses situations d'intérêt pratique, la taille des bulles est significativement plus petite que la taille caractéristique du domaine occupé par la suspension. Dans cette situation, il est naturel de chercher à caractériser le comportement du matériau en le supposant homogène. L'objet des méthodes d'homogénéisation est justement de définir le comportement homogène « équivalent » du matériau en partant de la description de ses caractéristiques hétérogènes (i.e la taille des bulles, la valeur de la tension de surface, la compressibilité du gaz... dans notre cas). Pour formaliser cette approche, il convient de distinguer trois longueurs caractéristiques pour le problème étudié : L de l'ordre de grandeur d'une dimension caractéritique de la structure étudiée, ℓ de l'ordre de grandeur de la taille du volume élémentaire représentatif (VER) et d de l'ordre de grandeur de la taille des hétérogénéités du matériau. Quant à la taille du VER, elle doit vérifier la condition de séparation des échelles $d \ll \ell \ll L$. Elle est donc suffisamment grande par rapport à l'échelle microscopique (condition $d \ll \ell$) pour que le comportement du VER puisse être caractérisé par une loi homogène équivalente et suffisamment petite par rapport à l'échelle macroscopique (condition $\ell \ll L$) pour que la structure puisse être modélisée comme un milieu continu. Quand ces conditions sont vérifiées, il est possible de déterminer le comportement homogène équivalent du VER en résolvant un problème posé sur le domaine occupé par le VER pour le matériau hétérogène. Dans les situations où cette approche peut être mise en œuvre (le matériau est alors homogénéisable), le comportement homogénéisé peut être déterminé en calculant la moyenne de la solution sur le VER quand celui-ci est soumis à une déformation homogène sur le bord avec des forces de volume nulles. Évidemment, la justification de ce résultat ainsi que la définition de son domaine de validité nécessitent une discussion plus complète que le simple énoncé qui vient d'en être donné. Ces questions ayant été traitées en détail dans de nombreux ouvrages [27], [60], [66], nous renvoyons le lecteur intéressé à ces références.

Dans la suite de ce paragraphe, nous présentons d'abord l'approche générale pour le problème d'homogénéisation d'un VER de suspension de bulles immergées dans un matériau élastique linéaire. Nous présentons ensuite quelques schémas classiques d'estimation des caractéristiques macroscopiques des suspensions de bulles : le schéma dilué, le schéma de Mori-Tanaka et le schéma autocohérent. Chacun de ces schémas est construit de façon à rendre compte de certaines propriétés morphologiques du milieu étudié.

4.2.1 Approche générale

Nous considérons ici le problème d'un VER de suspension constitué de n bulles d'air sphériques immergées dans une matrice constituée d'un matériau élastique linéaire homogène de module \mathbb{C}_m . Chaque bulle de rayon a_i occupe un domaine I_i avec $i \in [1, n]$. Ce VER est soumis à un chargement en déformation E à l'infini sans force de volume. Dans la configuration initiale, le matériau est libre de contrainte et la pression dans chaque bulle est égale à la pression de Laplace. Dans cette configuration, les efforts dans le système vérifient :

$$\boldsymbol{\sigma}_0(\underline{x}) = 0 \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega_m = \Omega \setminus \bigcup_{i=1}^n I_i) \qquad (4.47a)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_0(\underline{x}) = -\frac{2\sigma}{a_i}\boldsymbol{\delta} \tag{(\forall \underline{x} \in I_i)} \tag{4.47b}$$

$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{\sigma}_0 \end{bmatrix} \cdot \underline{N} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{B}_i \underline{N} = \underline{0} \qquad (\forall \ \underline{x} \in \partial I_i) \qquad (4.47c)$$

div $\boldsymbol{\sigma}_0 = \underline{0} \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega) \qquad (4.47d)$

 B_i désigne le tenseur courbure de l'interface capillaire de la *i*ème bulle dans la configuration initiale.

Dans la configuration déformée, les champs $\underline{\xi}$, ε et σ doivent vérifier les équations suivantes :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x} \qquad (|\underline{x}| \to \infty) \qquad (4.48a)$$

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \mathbb{C}_m : \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega_m) \tag{4.48b}$$

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = -\frac{2\sigma}{a_i}\boldsymbol{\delta} + k_g \frac{\sigma v_i}{V_i}\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \ \underline{x} \in I_i)$$
(4.48c)

$$\llbracket \boldsymbol{\sigma} \rrbracket \cdot \underline{n} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{b}_{i\underline{n}} = \underline{0} \qquad (\forall \underline{x} \in \partial I_i) \qquad (4.48d)$$

div
$$\boldsymbol{\sigma} = \underline{0}$$
 $(\forall \underline{x} \in \Omega)$ (4.48e)

avec V_i le volume de la *i*ème bulle, δV_i la variation de volume de la *i*ème bulle due à l'application du chargement E, b_i le tenseur courbure de l'interface capillaire de la *i*ème bulle.

La contrainte macroscopique dans le VER est définie comme la moyenne des efforts microscopiques [66]. Nous avons donc :

$$\boldsymbol{\Sigma} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle = (1 - \varphi) \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_m + \sum_{i=1}^n \varphi_i \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i$$
(4.49)

avec $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_m$ la moyenne de la contrainte dans la matrice et $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i$ la moyenne de la contrainte dans le domaine I_i . φ_i désigne la fraction volumique occupée par la bulle i et $\varphi = \sum_{i=1}^n \varphi_i$ la fraction volumique occupée par toutes les bulles. Comme les efforts intérieurs dans l'interface capillaire sont du type tension de membrane, la relation (4.49) doît être comprise au sens des distributions [17], [18]. Plus précisement, on a :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle = \frac{1}{|\Omega|} (\int_{\Omega} \boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) d\Omega + \int_{\omega} \boldsymbol{n}(\underline{x}) dS)$$
 (4.50)

avec ω le domaine occupé par les interfaces capillaires et $n(\underline{x})$ le champ des efforts de membrane dans les interfaces capillaires égal à $\sigma \delta_{T\omega(\underline{x})}$ avec $\delta_{T\omega(\underline{x})}$ l'identité du plan tangent à l'interface capillaire en chaque point.

Comme le comportement de la matrice est élastique linéaire homogène, nous avons :

$$\boldsymbol{\Sigma} = (1 - \varphi) \mathbb{C}_m : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m + \sum_{i=1}^n \varphi_i \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i$$
(4.51)

avec $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m$ la moyenne de déformation dans la matrice.

Nous avons la relation classique pour le mode de chargement uniforme en déformation (4.48a) :

$$\boldsymbol{E} = (1 - \varphi) \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m + \sum_{i=1}^n \varphi_i \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i$$
(4.52)

avec $\langle \varepsilon \rangle_i$ la moyenne de déformation dans la *i*ème bulle. En combinant (4.51) et (4.52), nous obtenons :

$$\boldsymbol{\Sigma} = \mathbb{C}_m : \boldsymbol{E} + \sum_{i=1}^n \varphi_i (\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i - \mathbb{C}_m : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i)$$
(4.53)

On est dans la situation où le comportement de la matrice (4.48b) et du gaz contenu dans chaque bulle (4.48c) est élastique linéaire. En se plaçant de nouveau sous l'hypothèse des petites perturbations, on peut linéariser l'équation d'équilibre de l'interface capillaire (4.48d) en utilisant le résultat :

$$\operatorname{tr} \boldsymbol{b}_{i} = \operatorname{tr} \boldsymbol{B}_{i} + \delta \operatorname{tr} \boldsymbol{B}_{i} = -\frac{2}{a_{i}} + \delta \operatorname{tr} \boldsymbol{B}_{i}$$
(4.54)

où $\delta \text{tr} B_i$ désigne la variation au premier ordre de la trace du tenseur courbure de la *i*ème bulle. Le problème ainsi défini étant complètement linéaire, la quantité $\delta \text{tr} B_i$ dépend linéairement de E pour chaque bulle, les grandeurs $\langle \sigma \rangle_i$ et $\langle \varepsilon \rangle_i$ se calculent en utilisant les mêmes relations qu'aux paragraphes 1.1.1 et 1.1.2. Elles dépendent donc linéairement de la déformation macroscopique imposée E. On peut donc écrire les grandeurs $\langle \varepsilon \rangle_i$ et $\langle \sigma \rangle_i$ sous la forme :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i = \mathcal{U}_i : \boldsymbol{E}$$
 (4.55a)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i = \mathcal{V}_i : \boldsymbol{E}$$
 (4.55b)

avec \mathcal{U}_i et \mathcal{V}_i deux tenseurs du quatrième ordre dont la valeur dépend des coefficients d'élasticité de la matrice, de la tension de surface σ et de la microstructure de la suspension (*i.e.* de la position et de la taille des bulles).

En pratique, il n'est pas possible de calculer exactement les grandeurs \mathcal{U}_i et \mathcal{V}_i pour chaque réalisation du milieu. En fait, nous construisons une première famille d'estimations des caractéristiques macroscopiques du milieu étudié en estimant ces deux grandeurs \mathcal{U}_i et \mathcal{V}_i par la solution du même problème mais pour une unique bulle immergée dans un matériau élastique soumise à une déformation homogène à l'infini. Dans ce cas, nous simplifions les moyennes de déformation et de contraintes dans les inclusions $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i \simeq \mathbb{U}(\varphi, \sigma, G, \operatorname{schéma}) : \boldsymbol{E}$ et $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i \simeq \mathbb{V}(\varphi, \sigma, G, \operatorname{schéma}) :$ \boldsymbol{E} dont la valeur dépend du schéma d'homogénéisation particulier utilisé.

La contrainte macroscopique dépend donc linéairement de la déformation macroscopique du matériau, nous avons alors :

$$\Sigma = \mathbb{C}^{hom} : E \tag{4.56}$$

En combinant (4.53), (4.55a), (4.55b) et (4.56), nous montrons que :

$$\mathbb{C}^{hom} = \mathbb{C}_m + \sum_{i}^{n} \varphi_i (\mathcal{V}_i - \mathbb{C}_m : \mathcal{U}_i)$$
(4.57)

Nous obtenons donc que le module de cisaillement élastique macroscopique s'écrit :

$$G^{hom} = G + \sum_{i}^{n} \varphi_{i}(\mathbb{V}(\varphi, \sigma, G, \operatorname{sch\acute{e}ma}) - 2G\mathbb{U}(\varphi, \sigma, G, \operatorname{sch\acute{e}ma}))$$
(4.58)

Pour prendre en compte la déformabilité de la bulle par rapport à celle du milieu dans lequel elle est suspendue, nous introduisons le nombre capillaire Ca_{elast} avec :

$$Ca_{elast} = \frac{G}{\sigma/a} \tag{4.59}$$

Nous pouvons réécrire les modules de l'inclusion sphérique équivalente dans un milieu élastique infini sous la forme :

$$G_i^{eqvt} = \frac{8G}{3 + 10Ca_{elast}} \tag{4.60a}$$

$$k_i^{eqvt} = k_g - \frac{2}{3} \frac{G}{Ca_{elast}}$$
(4.60b)

Dans la suite, en utilisant la solution du problème de l'approche générale, les schémas « classiques » sont présentés et mis en œuvre pour estimer les caractéristiques macroscopiques de différentes suspensions de bulles.

4.2.2 Schéma dilué

Reprenant exactement le même matériau que celui considéré au paragraphe précédent, nous rajoutons l'hypothèse que la concentration en bulles est suffisamment faible pour qu'il soit possible de négliger les interactions entre les inclusions. Dans cette situation, il est légitime d'estimer la déformation de la matrice « loin de l'inclusion » par la déformation macroscopique E appliquée au VER, c'est-à-dire que chaque bulle se trouve immergée dans une matrice de matériau soumise à « grande distance » à une déformation E. Cette définition correspond exactement à la solution du problème général (4.38) et (4.39) que l'on a présenté dans la partie 1.1. On écrit donc (4.53) sous la forme :

$$\boldsymbol{\Sigma} = (2G\mathbb{K} + 3k\mathbb{J}) : \boldsymbol{E} + \sum_{i=1}^{n} \varphi_i(\mathbb{V}_{b_i} : \boldsymbol{E} - (2G\mathbb{K} + 3k\mathbb{J}) : \mathbb{U}_{b_i} : \boldsymbol{E})$$
(4.61)

avec $\mathbb{U}_{b_i} = \mathbb{U}_b(G, k, \frac{\sigma}{a_i})$ et $\mathbb{V}_{b_i} = \mathbb{V}_b(G, k, \frac{\sigma}{a_i})$:

$$\mathbb{U}_{b_i} = U_{b_i}^c \mathbb{J} + U_{b_i}^s \mathbb{K}$$

$$\mathbb{V}_{t_i} = V_{t_i}^c \mathbb{I} + V_{t_i}^s \mathbb{K}$$

$$(4.62a)$$

$$(4.62b)$$

$$\mathbb{V}_{b_i} = V_{b_i}^c \mathbb{J} + V_{b_i}^s \mathbb{K}$$
(4.62b)

où

$$U_{b_i}^c = \frac{3k + 4G}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a_i}}$$
(4.63a)

$$V_{b_i}^c = 3k - 4G \frac{3k - 3k_g + \frac{2\sigma}{a_i}}{4G + 3k_g - \frac{2\sigma}{a_i}}$$
(4.63b)

$$U_{b_i}^s = \frac{30Gk + 9k\frac{\sigma}{a_i} + 40G^2 + 12G\frac{\sigma}{a_i}}{18Gk + 16G^2 + 24G\frac{\sigma}{a_i} + 15k\frac{\sigma}{a_i}}$$
(4.63c)

$$V_{b_i}^s = \frac{16(3k+4G)G\frac{\sigma}{a_i}}{18Gk+16G^2+24G\frac{\sigma}{a_i}+15k\frac{\sigma}{a_i}}$$
(4.63d)

En reportant (4.62a) et (4.62b) dans (4.61) on obtient :

$$\boldsymbol{\Sigma} = (2G\mathbb{K} + \sum_{i=1}^{n} \varphi_i (V_{b_i}^s - 2GU_{b_i}^s)\mathbb{K} + 3k\mathbb{J} + \sum_{i=1}^{n} \varphi_i (V_{b_i}^c - 2GU_{b_i}^c)\mathbb{J}) : \boldsymbol{E}$$
(4.64)

D'autre part, la contrainte macroscopique s'écrit sous la forme :

$$\boldsymbol{\Sigma} = (2G^{hom}\mathbb{K} + 3k^{hom}\mathbb{J}) : \boldsymbol{E}$$
(4.65)

En combinant (4.64) et (4.65), nous obtenons G_{DL}^{hom} et k_{DL}^{hom} dans ce cas :

$$\begin{split} G_{DL}^{hom} &= G + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{n} \varphi_i (V_{b_i}^s - 2GU_{b_i}^s) \\ &= G + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{n} \varphi_i (\frac{16(3k+4G)G\frac{\sigma}{a_i}}{18Gk+16G^2+24G\frac{\sigma}{a_i}+15k\frac{\sigma}{a_i}} - 2G\frac{30Gk+9k\frac{\sigma}{a_i}+40G^2+12G\frac{\sigma}{a_i}}{18Gk+16G^2+24G\frac{\sigma}{a_i}+15k\frac{\sigma}{a_i}}) \\ &= G + \sum_{i=1}^{n} \varphi_i \frac{5G(3k\frac{\sigma}{a_i}+4G\frac{\sigma}{a_i}-6Gk-8G^2)}{18Gk+16G^2+24G\frac{\sigma}{a_i}+15k\frac{\sigma}{a_i}} \\ &\qquad (4.66a) \\ k_{DL}^{hom} &= k + \frac{1}{3} \sum_{i=1}^{n} \varphi_i (V_{b_i}^c - 3kU_{b_i}^c) \\ &= k + \frac{1}{3} \sum_{i=1}^{n} \varphi_i ((3k-4G\frac{3k-3k_g+\frac{2\sigma}{a_i}}{4G+3k_g-\frac{2\sigma}{a_i}}) - 3k\frac{3k+4G}{4G+3k_g-\frac{2\sigma}{a_i}}) \\ &= k + \frac{1}{3} \sum_{i=1}^{n} \varphi_i (3k - \frac{-24Gk+12Gk_g-8G\frac{\sigma}{a_i}-9k^2}{4G+3k_g-\frac{2\sigma}{a_i}}) \end{split}$$

$$(4.66b)$$

Dans le cas d'un matériau constitué d'une matrice dont le comportement est élastique linéaire isotrope incompressible (quand k tend vers l'infini), nous obtenons alors $G_{DL,k\to\infty}^{hom}$:

$$G_{DL,k\to\infty}^{hom} = G + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{n} \varphi_i \frac{16G\frac{\sigma}{a_i} - 2G(10G + 3\frac{\sigma}{a_i})}{6G + 5\frac{\sigma}{a_i}}$$
(4.67)

En introdusant le nombre capillaire Ca_{elast} dans (4.67), nous avons donc :

$$G_{k \to \infty}^{hom} = G(1 + 5\varphi \frac{1 - 2Ca_{elast}}{5 + 6Ca_{elast}})$$
(4.68)

En développant (4.68) quand Ca_{elast} tend vers l'infini, nous retrouvons la même estimation que celle d'un matériau poreux dont la matrice est constituée d'un matériau élastique isotrope incompressible et dont les pores sont sphériques [27] :

$$G_{k \to \infty, Ca_{elast} \to \infty}^{hom} = G(1 - \frac{5}{3}\varphi)$$
(4.69)

Enfin, dans le cas où la matrice est élastique linéaire isotrope incompressible (k tend vers infini) et les bulles sont indéformables (Ca_{elast} tend vers zéro), nous avons :

$$G_{k \to \infty, Ca_{elast} \to 0}^{hom} = G(1 + \varphi) \tag{4.70}$$

Nous obtenons exactement le même résultat dans le cas d'inclusions élastiques linéaires isotropes équivalentes noyées dans une matrice de caractéristique élastique linéaire isotrope.

La figure (4.1) présente l'estimation diluée du module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles. La ligne rouge est le tracé de l'expression (4.70) dans le cas



FIGURE 4.1 – Estimation diluée du module de cisaillement adimensionné en fonction de la concentration en bulles.

où les bulles sont indéformables. La ligne bleu est le tracé de l'expression (4.69) pour le cas où les bulles n'ont pas de tension de surface (très déformables). Les lignes verte, jaune et marron sont respectivement les tracés des exemples où $Ca_{elast} = 1/2$, $Ca_{elast} = 0, 2$ et $Ca_{elast} = 5$. Nous trouvons que les bulles ont un effet renforçant si $Ca_{elast} < 1/2$ alors qu'elles ont un effet assouplissant si $Ca_{elast} > 1/2$.

4.2.3 Schéma de Mori-Tanaka

Considérant le même matériau que dans le paragraphe précédent, nous tenons compte ici des interactions entre les inclusions. Pour cela, nous proposons de considérer que « loin des inclusions » la déformation dans la matrice est égale à $E_m = \langle \varepsilon \rangle_m$ qui est la valeur moyenne de la déformation dans la matrice :

$$\underline{\xi} \to \underline{E}_m \cdot \underline{x} = \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m \cdot \underline{x} \quad (|\underline{x}| \to \infty) \tag{4.71}$$

La déformation moyenne et la contrainte moyenne dans la *i*ème bulle se calcule alors à partir du résultat du problème général en remplaçant E par $\langle \varepsilon \rangle_m$:

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i = \mathbb{U}_{b_i} : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m$$
(4.72a)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_i = \mathbb{V}_{b_i} : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m$$
(4.72b)

La relation $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \boldsymbol{E}$ permet de calculer la valeur du tenseur $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m$ en fonction de \boldsymbol{E} :

$$\boldsymbol{E} = \sum_{i=1}^{n} \varphi_i \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i + (1 - \varphi) \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m \tag{4.73}$$

En combinant (4.72a) et (4.73), nous obtenons :

$$\boldsymbol{E} = \left(\sum_{i=1}^{n} \varphi_i \mathbb{U}_{b_i} + (1 - \varphi) \mathbb{I}\right) : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m \tag{4.74}$$

En suite, nous écrivons donc (4.53) sous la forme :

$$\boldsymbol{\Sigma} = (2G\mathbb{K} + 3k\mathbb{J}) : \boldsymbol{E} + \sum_{i=1}^{n} \varphi(\mathbb{V}_{b_i} : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m - (2G\mathbb{K} + 3k\mathbb{J}) : \mathbb{U}_{b_i} : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_m)$$
(4.75)

En reportant (4.62a), (4.62b) et (4.74) dans (4.75) nous obtenons :

$$\Sigma = \left(2G\left(\sum_{i=1}^{n}\varphi_{i}U_{b_{i}}^{s}+(1-\varphi)\right)+\sum_{i=1}^{n}\varphi_{i}\left(V_{b_{i}}^{s}-2GU_{b_{i}}^{s}\right)\right)\mathbb{K}:\langle\varepsilon\rangle_{m}$$
$$+\left(3k\left(\sum_{i=1}^{n}\varphi_{i}U_{b_{i}}^{c}+(1-\varphi)\right)+\sum_{i=1}^{n}\varphi_{i}\left(V_{b_{i}}^{c}-3kU_{b_{i}}^{c}\right)\right)\mathbb{J}:\langle\varepsilon\rangle_{m}$$
(4.76a)

D'autre part, en reportant la relation (4.74) dans (4.65), nous réécrivons la contrainte macroscopique sous la forme :

$$\Sigma = (2G^{hom}\mathbb{K} + 3k^{hom}\mathbb{J}) : (\sum_{i=1}^{n} \varphi_i (U_{b_i}^c \mathbb{J} + U_{b_i}^s \mathbb{K}) + (1 - \varphi)\mathbb{I}) : \langle \varepsilon \rangle_m$$
$$= 2G^{hom} (\sum_{i=1}^{n} \varphi_i U_{b_i}^s + (1 - \varphi))\mathbb{K} : \langle \varepsilon \rangle_m + 3k^{hom} (\sum_{i=1}^{n} \varphi_i U_{b_i}^c + (1 - \varphi))\mathbb{J} : \langle \varepsilon \rangle_m \quad (4.77a)$$

En combinant (4.76a) et (4.77a), nous obtenons G^{hom} et k^{hom} dans ce cas :

$$\begin{split} G^{hom} &= G + \frac{1}{2} \frac{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i}}{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i} U_{b_{i}}^{s} + (1 - \varphi)} (V_{b_{i}}^{s} - 2GU_{b_{i}}^{s}) \\ &= G + \frac{1}{2} \frac{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i}}{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i} \frac{30Gk + 9k\frac{\sigma}{a_{i}} + 40G^{2} + 12G\frac{\sigma}{a_{i}}}{18Gk + 16G^{2} + 24G\frac{\sigma}{a_{i}} + 15k\frac{\sigma}{a_{i}}} + (1 - \varphi)} \\ &(\frac{16(3k + 4G)G\frac{\sigma}{a_{i}}}{18Gk + 16G^{2} + 24G\frac{\sigma}{a_{i}} + 15k\frac{\sigma}{a_{i}}} - 2G\frac{30Gk + 9k\frac{\sigma}{a_{i}} + 40G^{2} + 12G\frac{\sigma}{a_{i}}}{18Gk + 16G^{2} + 24G\frac{\sigma}{a_{i}} + 15k\frac{\sigma}{a_{i}}}) \quad (4.78a) \\ k^{hom} &= k + \frac{1}{3} \frac{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i}}{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i}U_{b_{i}}^{c} + (1 - \varphi)} (V_{b_{i}}^{c} - 3kU_{b_{i}}^{c}) \\ &= k + \frac{1}{3} \frac{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i}}{\sum_{i=1}^{n} \varphi_{i} \frac{3k + 4G}{4G + 3k_{g} - \frac{2\sigma}{a_{i}}} + (1 - \varphi)} (3k - 4G\frac{3k - 3k_{g} + \frac{2\sigma}{a_{i}}}{4G + 3k_{g} - \frac{2\sigma}{a_{i}}} \\ &- 3k\frac{3k + 4G}{4G + 3k_{g} - \frac{2\sigma}{a_{i}}}) \end{split}$$

$$\tag{4.78b}$$

Dans le cas d'un matériau constitué d'une matrice dont le comportement est élastique linéaire isotrope incompressible (quand k tend vers l'infini), en introduisant le nombre de capillaire Ca_{elast} nous obtenons alors $G_{MT,k\to\infty}^{hom}$:

$$G_{MT,k\to\infty}^{hom} = \frac{1+3\frac{1-2Ca_{elast}}{5+6Ca_{elast}}\varphi}{1-2\frac{1-2Ca_{elast}}{5+6Ca_{elast}}\varphi}G$$
(4.79)

Quand nous faisons tendre Ca_{elast} vers zéro et k vers l'infini, nous obtenons :

$$G_{MT,Ca_{elast}\to 0,k\to\infty}^{hom} = \frac{5+3\varphi}{5-2\varphi}G$$
(4.80)

Quand on fait tendre Ca_{elast} vers l'infini et k vers l'infini, nous retrouvons l'estimation de Mori-Tanaka du milieu poreux dont la matrice est incompressible :

$$G_{MT,Ca_{elast}\to\infty,k\to\infty}^{hom} = \frac{3(1-\varphi)}{3+2\varphi}G$$
(4.81)

En plus, à partir de ce résultat, nous pouvons vérifier que le schéma dilué est une approximation au premier ordre en φ du schéma de Mori-Tanaka.



FIGURE 4.2 – Estimation de Mori-Tanaka du module de cisaillement adimensionné en fonction de la concentration en bulles.

La figure (4.2) représente l'estimation de Mori-Tanaka du module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles. Les lignes rouge et bleu représentent respectivement l'estimation dans le cas où $Ca_{elast} \rightarrow 0$ et $Ca_{elast} \rightarrow \infty$. Les lignes verte, marron et jaune représentent l'estimation d'homogénéisation dans le cas où $Ca_{elast} = 1/2$, $Ca_{elast} = 0, 2$ et $Ca_{elast} = 5$. L'estimation de Mori-Tanaka améliore l'estimation diluée pour les valeurs de φ qui se sont pas très petites devant 1.

4.2.4 Schéma autocohérent

Il est connu que le schéma de Mori-Tanaka ne permet pas de rendre compte du phénomène de percolation des inclusions pour une valeur de la fraction volumique différente de 1 [27]. Le schéma autocohérent constitue une première solution visant à prendre en compte ce phénomène. Pour estimer le tenseur de localisation dans chacune des phases, nous estimons que chaque inclusion est entourée par le milieu continue équivalent cherché soumis à une déformation homogène ε_m loin de l'inclusion. Dans le cas d'un matériau biphasique, nous montrons que :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_i = [\mathbb{I} + \mathbb{R}_h : (\mathbb{C}_i - \mathbb{C}^{hom})]^{-1} : \boldsymbol{\varepsilon}_m$$

$$(4.82)$$

où $i = 1, 2, \mathbb{R}_h$ est le tenseur du quatrième ordre qui dépend des valeurs du tenseur d'élasticité \mathbb{C}_i . Dans ce cas, la valeur ε_m est déterminée grâce à la relation $\langle \varepsilon \rangle = E$. Dans le cas d'inhomogénéités de même forme et de même orientation, nous montrons que $\langle \varepsilon \rangle_m = E$. Nous en déduisons l'estimation des tenseurs de localisation par phase :

$$\mathbb{A}_i = [\mathbb{I} + \mathbb{R}_h : (\mathbb{C}_i - \mathbb{C}^{hom}]^{-1}$$
(4.83)

L'estimation autocohérente du tenseur d'élasticité macroscopique s'obtient alors dans ce cas en résolvant l'équation :

$$(1-\varphi)(\mathbb{C}_m - \mathbb{C}^{hom}) : [\mathbb{I} + \mathbb{R}_h : (\mathbb{C}_m - \mathbb{C}^{hom})]^{-1} + \varphi(\mathbb{C}_i - \mathbb{C}^{hom}) : [\mathbb{I} + \mathbb{R}_h : (\mathbb{C}_i - \mathbb{C}^{hom})]^{-1} = 0$$
(4.84)

Cette équation est équivalente aux deux équations scalaires suivantes :

$$(1-\varphi)\frac{G-G^{hom}}{1+\beta^{hom}\frac{G-G^{hom}}{G^{hom}}}+\varphi\frac{G_i-G^{hom}}{1+\beta^{hom}\frac{G_i-G^{hom}}{G^{hom}}}=0$$
(4.85a)

$$(1-\varphi)\frac{k-k^{hom}}{1+\alpha^{hom}\frac{k-k^{hom}}{k^{hom}}} + \varphi\frac{k_i - k^{hom}}{1+\alpha^{hom}\frac{k_i - k^{hom}}{k^{hom}}} = 0$$
(4.85b)

où

$$\beta^{hom} = \frac{6k^{hom} + 12G^{hom}}{15k^{hom} + 20G^{hom}}$$
(4.86a)

$$\alpha^{hom} = \frac{3k^{hom}}{3k^{hom} + 4G^{hom}} \tag{4.86b}$$

Comme nous l'avons montré il est possible de remplacer des bulles monodisperses suspendues dans un milieu élastique infini par une inclusion équivalente de caractéristiques données par (4.60a) et (4.60b), nous construisons donc l'estimation autocohérent pour des bulles en résolvant les deux équations (4.85a) et (4.85b) en imposant :

$$G_i = \frac{8G^{hom}}{3 + 10Ca_{elast}} \tag{4.87a}$$

$$k_i = k_g - \frac{2}{3} \frac{G^{hom}}{Ca_{elast}}$$
(4.87b)

L'estimation du module de cisaillement s'obtient en résolvant une équation polynomiale de degré supérieur à trois. Il n'est donc pas possible d'en donner une expression analytique. Nous montrons qu'il existe une seule bonne solution qui donne la valeur de G quand f = 0. Nous vérifions qu'en faisant tendre φ vers zéro ou quand $Ca_{elast} = 1/2$, nous trouvons que $G_{AC}^{hom} = G$.

Quand nous faisons tendre Ca_{elast} vers l'infini et k vers l'infini, pour les valeurs de φ strictement inférieures à 1/2, nous retrouvons l'estimation autocohérente du milieu poreux [27].

$$G_{AC,Ca_{elast}\to\infty}^{hom} = \frac{3-6\varphi}{3-\varphi}G \tag{4.88}$$

Quand Ca_{elast} tend vers zéro, pour les valeurs de φ inférieures à 5/8, nous retrouvons également l'estimation autocohérente du milieu poreux [27].

$$G^{hom}_{AC,Ca_{elast}\to 0} = \frac{3\varphi - 5}{8\varphi - 5}G \tag{4.89}$$

4.2.5 Approche par motif morphologique

Nous avons présenté les schémas classiques permettant d'obtenir des estimations des caractéristiques macroscopiques des différentes suspensions de bulles. Ces trois estimations ne permettent pas de prédire les caractéristiques d'une suspension concentrée de bulles dans toutes les situations. Dans le but de mieux prendre en compte les interactions entre bulles à fortes valeurs de la concentration, nous mettons en œuvre une approche par motifs morphologiques. Cette approche permet de contrôler la valeur du seuil de percolation des bulles.

Nous considérons donc un schéma en assemblant deux motifs. Le premier motif M_1 est constitué d'une bulle sphérique de rayon a suspendue dans une couronne de matériau compressible isotrope de caractéristiques G, λ de rayon extérieur b immergée dans une matrice infinie homogène élastique isotrope de caractéristique G_0 et λ_0 . A l'interface entre la bulle et la couronne règne une tension de surface σ . Au sein de ce motif, la bulle occupe la fraction volmique $x = (\frac{a}{b})^3$ du motif. Les motifs M_1 occupent une fraction volumique f au sein de l'assemblage. La fraction volumique occupée par les bulles dans ce schéma à deux motifs est donc égale à $\varphi = xf$. L'épaisseur de la couronne M_1 diminue quand la fraction volumique en bulles φ augmente. En fait, l'épaisseur de la couronne M_1 est proportionnelle au rayon de la bulle et à la fraction volumique occupée par la phase gazeuse au sein de la suspension.

Le deuxième motif M_2 consiste en une inclusion sphérique homogène élastique isotrope de module G et k suspendue dans une matrice de caractéristiques G_0 , λ_0 . Nous faisons de plus l'hypothèse que la distribution des centres du motif M_1 est isotrope au sein du composite. Le champ de déformation imposé à l'infini E est donc identique pour les deux motifs [11]. Pour une valeur de E, les moyennes de contraintes et des déformations dans chacun des deux motifs sont calculées en considérant qu'ils sont immergés dans un milieu linéaire dont les caractéristiques matérielles (G_0, k_0) sont celles de la suspension (G^{hom}, k^{hom}) (*i.e* on pose $G_0 = G^{hom}$, $k_0 = k^{hom}$). Ce modèle définit donc le modèle à deux motifs et à deux phases. Compte tenu de la symétrie sphérique du problème, la résolution s'obtient à partir de la solution pour une compression isotrope $E = E\delta$ et de la solution pour un cisaillement pur $E = \underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y$. En utilisant le principe de superposition, on montre que pour chacun des motifs la moyenne de la contrainte et la moyenne de la déformation s'écrivent grâce aux relations :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{m_i} = \mathbb{V}_{m_i} : \boldsymbol{E}$$
 (4.90a)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{m_i} = \mathbb{U}_{m_i} : \boldsymbol{E}$$
 (4.90b)

où

$$\mathbb{V}_{m_i} = V_{m_i}^c \mathbb{J} + V_{m_i}^s \mathbb{K}$$
(4.91a)

$$\mathbb{U}_{m_i} = U_{m_i}^c \mathbb{J} + U_{m_i}^s \mathbb{K}$$
(4.91b)

avec i = 1, 2. Le comportement effectif est alors défini par l'équation [11] :

$$\mathbb{C}_{motif}^{hom} = (f\mathbb{U}_{m_i}) : ((1-f)\mathbb{V}_{m_i})^{-1}$$
(4.92)

ou nous pouvons également écrire dans le cas isotrope :

$$2G^{hom} = \frac{fU_{m_1}^s + (1-f)U_{m_2}^s}{fV_{m_1}^s + (1-f)V_{m_2}^s}$$
(4.93a)

$$3k^{hom} = \frac{fU_{m_1}^c + (1-f)U_{m_2}^c}{fV_{m_1}^c + (1-f)V_{m_2}^c}$$
(4.93b)

Dans la suite, nous présentons le calcul en détail des deux motifs.

Pour le premier motif M_1 , nous reprenons exactement les hypothèses de la section (4.2.1). Dans l'état initial, les efforts dans le système vérifient les équations qui décrivent le comportement dans la bulle, celui dans la couronne et celui dans la matrice ainsi que les équations d'équilibre dans l'interface entre la bulle et la couronne et celle entre la couronne et la matrice :

$$\boldsymbol{\sigma}_0(\underline{x}) = 0 \qquad \qquad (\forall \, \underline{x} \in (r > a)) \qquad (4.94a)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_0(\underline{x}) = -\frac{2\sigma}{a}\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \ \underline{x} \in (r < a)) \tag{4.94b}$$

$$\llbracket \boldsymbol{\sigma}_0 \rrbracket \cdot \underline{N} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{B} \underline{N} = \underline{0} \qquad (\forall \underline{x} \in (r = a)) \qquad (4.94c)$$

$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{\sigma}_0 \end{bmatrix} \cdot \underline{N} = \underline{0} \qquad (\forall \ \underline{x} \in (r=b)) \qquad (4.94d)$$

div
$$\boldsymbol{\sigma}_0 = \underline{0}$$
 $(\forall \ \underline{x} \in \Omega)$ (4.94e)

Identiquement, dans la configuration finale, la solution de ce problème vérifie les équations suivantes :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x} \tag{(|\underline{x}| \to \infty)} \tag{4.95a}$$

$$\sigma(\underline{x}) = 2G\varepsilon(\underline{x}) + \lambda \operatorname{tr} \varepsilon(\underline{x})\delta \qquad (\forall \, \underline{x} \in (a < r < b)) \qquad (4.95b)$$

$$\sigma(\underline{x}) = 2G_0\varepsilon(\underline{x}) + \lambda_0 \operatorname{tr} \varepsilon(\underline{x}) \delta \qquad (\forall \ \underline{x} \in (r > b)) \qquad (4.95c)$$

$$\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = -\frac{2\theta}{a}\boldsymbol{\delta} + k_g \frac{\theta v_b}{V_b}\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \ \underline{x} \in (r < a)) \tag{4.95d}$$

$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{\sigma} \end{bmatrix} \cdot \underline{n} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{b} \underline{n} = \underline{0} \qquad (\forall \underline{x} \in (r = a)) \qquad (4.95e)$$
$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{\sigma} \end{bmatrix} \cdot \underline{n} = 0 \qquad (\forall x \in (r = b)) \qquad (4.95f)$$

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = \underline{0} \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega) \qquad (4.95g)$$

La solution de ce problème s'écrit donc :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{m_1} = \mathbb{V}_{m_1} : \boldsymbol{E}$$
 (4.96a)

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{m_1} = \mathbb{U}_{m_1} : \boldsymbol{E}$$
 (4.96b)

où

$$\mathbb{V}_{m_1} = V_{m_1}^c \mathbb{J} + V_{m_1}^s \mathbb{K}$$
(4.97a)

$$\mathbb{U}_{m_1} = U_{m_1}^c \mathbb{J} + U_{m_1}^s \mathbb{K}$$
(4.97b)

Nous cherchons donc maintenant la solution dans le cas de chargement en compression isotrope et en cisaillement pur.

4.2.5.1 Chargement en compression isotrope

La condition (4.95a) s'écrit dans ce cas :

$$\xi \to \mathbf{E} \cdot \underline{x} = Er\underline{e}_r \qquad (r \to \infty)$$

$$(4.98)$$

En effet, nous avons présenté le calcul d'un problème d'une bulle sphérique dans un milieu infini dans la partie (4.1). Les étapes de calcul de ce problème sont donc le même pour le calcul de la bulle et de la couronne du motif M_1 qu'on cherche dans cette partie.

La solution dans la couronne est cherchée sous la forme :

$$\underline{\xi} = (E_1 r + \frac{E_2}{r^2})\underline{e}_r \tag{4.99}$$

où E_1 , E_2 sont des réels inconnus.

Nous calculons la déformation en utilisation la relation :

$$\varepsilon = \frac{1}{2} (\operatorname{grad} \underline{\xi} + {}^{t} \operatorname{grad} \underline{\xi})$$
(4.100)

puis la contrainte en utilisant la formulation :

$$\boldsymbol{\sigma} = 2G\boldsymbol{\varepsilon} + \lambda \mathrm{tr}\,\boldsymbol{\varepsilon}\boldsymbol{\delta} \tag{4.101}$$

Nous trouvons que l'équation d'équilibre (4.95g) est toujours vérifiée.

Pour la suite nous avons besoin d'écrire la solution dans la matrice. Elle s'écrit sous la forme (4.99) avec :

$$E_1 = 1$$
 (4.102a)

$$E_2 = E_{2_0} \tag{4.102b}$$

$$G = G_0 \tag{4.102c}$$

$$k = k_0 \tag{4.102d}$$

Nous calculons la déformation et la contrainte dans la matrice en utilisant (4.100) et (4.101) et on montre que l'équation (4.95g) est vérifiée.

Ensuite, nous utilisons les formules (4.15) et (4.16) afin de calculer les moyennes de la déformation $\langle \varepsilon \rangle_{m_1}^c$ et de la contrainte du motif $\langle \sigma \rangle_{m_1}^c$. Nous obtenons :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{m_1}^c = V_{m_1}^c \boldsymbol{E} \tag{4.103a}$$

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{m_1}^c = U_{m_1}^c \boldsymbol{E} \tag{4.103b}$$

où

$$V_{m_1}^c = -\frac{4G_0 E_{2_0} - 3b^3 k_0}{b^3} \tag{4.104a}$$

$$U_{m_1}^c = \frac{b^3 + E_{2_0}}{b^3} \tag{4.104b}$$

Il reste à écrire la condition à l'interface capillaire entre la bulle et la couronne (4.95e). Nous montrons que dans ce cas :

$$\operatorname{tr} \boldsymbol{b} = \operatorname{tr} \boldsymbol{B} + \delta \operatorname{tr} \boldsymbol{B} \tag{4.105a}$$

$$= -\frac{2}{a} + \delta \frac{2(E_1 a + \frac{E_2}{a^2})}{a^2}$$
(4.105b)

4.2.5.2 Chargement en cisaillement pur

La condition (4.95a) s'écrit dans ce cas :

$$\underline{\xi} \to \underline{E} \cdot \underline{x} = (\underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y) \cdot \underline{x} \qquad (r \to \infty)$$
(4.106)

Comme ce que nous avons présenté dans la partie du calcul de chargement en cisaillement pur d'une bulle sphérique dans un milieu infini, pour le motif M_1 nous écrivons également la même solution dans la couronne sous la forme :

$$\xi = \xi_r \underline{e}_r + \xi_\theta \underline{e}_\theta + \xi_\varphi \underline{e}_\varphi \tag{4.107}$$

où ξ_r , ξ_{θ} , ξ_{φ} prennent les mêmes valeurs que dans (4.25a), (4.25b) (4.25c). Nous utilisons les mêmes formules pour le calcul de la déformation, de la contrainte et pour vérifier l'équation d'équilibre.

Ensuite, nous cherchons la solution dans la matrice. Elle s'écrit sous la forme (4.107) avec :

$$A_1 = 1$$
 (4.108a)

$$A_2 = 0$$
 (4.108b)

$$A_3 = A_{3_0} \tag{4.108c}$$

$$A_4 = A_{4_0} \tag{4.108d}$$

$$G = G_0 \tag{4.108e}$$

$$k = k_0 \tag{4.108f}$$

Nous calculons la déformation et la contrainte dans la matrice en utilisant (4.100) et (4.101) et nous montrons que l'équation (4.95g) est vérifiée.

Pour calculer les moyennes de la déformation $\langle \varepsilon \rangle_{m_1}^s$ et de la contrainte du motif $\langle \sigma \rangle_{m_1}^s$, nous utilisons les formules (4.15) et (4.16). Nous obtenons donc :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{m_1}^c = V_{m_1}^s \boldsymbol{E} \tag{4.109a}$$

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{m_1}^c = U_{m_1}^s \boldsymbol{E} \tag{4.109b}$$

où

$$V_{m_1}^s = \frac{2}{15} \frac{1}{(G_0 + k_0)b^3} (G_0(-8G_0A_{4_0} + 15b^3k_0 + 15G_0b^3 - 9A_{4_0}k_0))$$
(4.110a)

$$U_{m_1}^s = \frac{1}{15} \frac{2A_{4_0}k_0 + 5b^3k_0 + 5G_0b^3 + 4G_0A_{4_0}}{(G_0 + k_0)b^3}$$
(4.110b)

Ensuite, nous avons besoin d'écrire les conditions d'équilibre à l'interface capillaire (4.95e). Nous montrons que dans la relation (4.111a), nous avons :

$$\operatorname{tr} \boldsymbol{b} = \operatorname{tr} \boldsymbol{B} + \delta \operatorname{tr} \boldsymbol{B} \tag{4.111a}$$

$$= -\frac{2}{a} + \delta(-4\sin\theta^2\cos 2\varphi)(\frac{A_1}{a} + A_2a + \frac{A_3}{a^6} + \frac{A_4}{a^4})$$
(4.111b)



FIGURE 4.3 – Estimation du module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles pour une suspension isotrope de bulles monodisperses pour $Ca_{elast} = 0$ (f = 0, 6) et $Ca_{elast} \rightarrow \infty$ (f = 0, 6).

Pour le deuxième motif M_2 , comme dans le calcul du motif M_1 , la résolution du problème est également défini par les équations (1.1) et (1.2) dans le cas général et elle s'obtient à partir de la solution pour une compression isotrope $E = E\delta$ et de la solution pour un cisaillement pur $E = \underline{e}_x \otimes \underline{e}_x - \underline{e}_y \otimes \underline{e}_y$. En effet, la localisation pour une sphère s'écrit en prennant en compte le fait que le matériau dans la couronne est incompressible (k tend vers l'infini) :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{m_2} = (V_{m_2}^c \mathbb{J} + V_{m_2}^s \mathbb{K}) : \boldsymbol{E}$$
 (4.112)

avec

$$V_{m_2}^c = \frac{1}{1 + \alpha \frac{k - k_0}{k_0}} \tag{4.113a}$$

$$V_{m_2}^s = \frac{1}{1 + \beta \frac{G - G_0}{G_0}} \tag{4.113b}$$

où

$$\alpha = \frac{3k_0}{3k_0 + 4G_0} \tag{4.114a}$$

$$\beta = \frac{6k_0 + 12G_0}{15k_0 + 20G_0} \tag{4.114b}$$

De façon identique, pour la moyenne de la contrainte du motif M_2 , nous obtenons :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{m_2} = (U_{m_2}^c \mathbb{J} + U_{m_2}^s \mathbb{K}) : \boldsymbol{E}$$
(4.115)

avec

$$U_{m_2}^c = 3kV_{m_2}^c \tag{4.116a}$$

$$U_{m_2}^s = 2GV_{m_2}^s \tag{4.116b}$$

4.2.5.3 Résolution de l'approche par motif morphologique



FIGURE 4.4 – Estimation du module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles pour une suspension isotrope de bulles monodisperses pour $Ca_{elast} = 0, 4$ (f = 0, 6) et $Ca_{elast} = 0, 7$ (f = 0, 6).

Nous avons calculé toutes les grandeurs nécessaires pour les équations (4.93a) et (4.93b). Nous nous intéressons ici à l'estimation autocohérente obtenue à partir de ces équations en imposant $G_0 = G^{hom}$ et $k_0 = k^{hom}$. Nous résolvons d'abord (4.93b) et nous obtenons le module de compressibilité macroscopique en fonction de G^{hom} et des caractéristiques des composants du matériau :

$$k^{hom} = -\frac{2}{3} \frac{-2G^{hom}a^4 + 2G^{hom}fa^4 + 2Ga^4 + \gamma b^3 - 2Gab^3}{a^4\varphi}$$
(4.117)

En reportant la valeur de k^{hom} dans l'équation (4.93a), nous pouvons trouver G^{hom}_{motif} . Nous montrons qu'il existe une seule bonne solution qui donne la valeur de G quand f = 0. L'estimation du module de cisaillement s'obtient en résolvant une équation polynomiale de degré supérieur à trois. Il n'est donc pas possible d'en donner une expression analytique.

En imposant a = b, nous retrouvons le schéma autocohérent classique.

Nous retrouvons également l'estimation diluée au premier ordre en φ à partir du schéma à motifs morphologiques.

Les prédictions de différents schémas d'homogénéisation sont représentées sur les diagrammes des figures (4.3) et (4.4) pour différentes valeurs du nombre capillaire. Les prédictions obtenues en mettant en œuvre le schéma de motif morphologique sont toujours comprises entre l'estimation autocohérente et l'estimation de Mori-Tanaka (voir figures (4.3) et (4.4)). Pour les quatres schémas, la transition entre les bulles renforçant le milieu et les bulles assouplissant le milieu se produit pour $Ca_{elast} = 1/2$. Les bulles ont un effet renforçant si $Ca_{elast} < 1/2$ (cas des bulles peu déformables) et au contraire assouplissant si $Ca_{elast} > 1/2$ (cas des bulles très déformables).

4.3 Homogénéisation non linéaire

Nous appliquons ici la méthode d'homogénéisation non linéaire décrite dans la section (2.5) prédire le comportement macroscopique d'une suspension de bulles dans un matériau non linéaire dans le cas où les interfaces ne stockent pas d'énergie. Cette condition est vérifiée quand $Ca \rightarrow \infty$ (tension de surface nulle) ou quand $Ca \rightarrow 0$ (tension de surface infinie et bulle indéformable). La méthode comprend 3 étapes.

La première étape consiste à résoudre un problème d'homogénéisation linéaire pour une suspension de bulles dans un fluide newtonien homogène isotrope de viscosité Gu. La viscosité macroscopique de la suspension est reliée à la viscosité du fluide porteur par le cœfficient $g(\varphi)$. On peut écrire :

$$\mu^{hom}(\varphi) = \mu g(\varphi) \tag{4.118}$$

La deuxième étape consite à choisir un taux de déformation effectif \tilde{d}^{eff} pour le fluide suspendant. Cette quantité mesure une moyenne des taux de déformations locaux au sein de la phase fluide à l'échelle microscopique. En mettant en œuvre la méthode d'homogénéisation non linéaire sécante modifiée de [60], le taux de déformation effectif est égal au moment du second ordre de la quantité \tilde{d} :

$$\tilde{d}^{eff} = \sqrt{\langle (\tilde{d})^2 \rangle_l} \tag{4.119}$$

avec $\tilde{d} = \sqrt{2\boldsymbol{d}:\boldsymbol{d}}$.

La troisième étape consiste à traiter la non linéarité du problème posé en calculant le grandeur \tilde{d}^{eff} en fonction de D. En exploitant les résultats généraux obtenus par Kreher [37] nous obtenons la relation :

$$\langle (\tilde{d})^2 \rangle_l = \frac{1}{1 - \varphi} \frac{\partial \mu^{hom}}{\partial \mu} \tilde{D} = \frac{1}{1 - \varphi} g(\varphi) \tilde{D}^2$$
(4.120)



FIGURE 4.5 – Définition du module sécant d'un fluide isotrope incompressible. Figure tirée de [19].

4.3.1 Suspension de bulles très déformables/non déformables dans un fluide de Herschel-Bulkley

Nous nous intéressons maintenant au comportement d'une suspension de bulles dans un fluide porteur qui obéit à la loi de comportement de type Herschel-Bulkley de contrainte seuil τ_c , de consistance η et d'indice plastique n. Cette loi s'écrit :

$$s = 2(\tau_c + \eta \tilde{d}^n) \frac{d}{\tilde{d}}$$
 et tr $d = 0$ si $\sqrt{1/2s : s} \ge \tau_c$ (4.121a)

$$d = 0$$
 si $\sqrt{1/2s : s} \le \tau_c$ (4.121b)
(4.121c)

Nous pouvons écrire la loi (4.121a) sous la forme suivante :

$$s = 2\tilde{\mu}(d)d$$
 avec tr $d = 0$ (4.122)

où $\tilde{\mu}(\tilde{d})$ est le module de viscosité sécant défini en chaque point de la phase fluide par :

$$\tilde{\mu}(\tilde{d}) = \frac{\tau_c}{\tilde{d}} + \eta \tilde{d}^{n-1} \tag{4.123}$$

Nous remplaçons le problème d'homogénéisation non linéaire original par un problème d'homogénéisation linéaire pour une suspension de bulles suspendues dans un fluide incompressible isotrope hétérogène de viscosité apparente $\tilde{\mu}(\tilde{d})$:

$$\xi \to \mathbf{D} \cdot \underline{x}$$
 $(|\underline{x}| \to \infty)$ (4.124a)

$$\mathbf{s}(\underline{x}) = 2\tilde{\mu}(\tilde{d})\mathbf{d}(\underline{x}) \qquad (\forall \ \underline{x} \in \Omega/I) \qquad (4.124b)$$

$$\boldsymbol{\sigma} = -p^{i}\boldsymbol{\delta} + k_{g}\mathrm{tr}\,\boldsymbol{\varepsilon}_{i}\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \,\underline{x} \in I_{i}) \qquad (4.124c)$$

$$\boldsymbol{\sigma} = -p^{i}\boldsymbol{\delta} + k_{g}\mathrm{tr}\,\boldsymbol{\varepsilon}_{i}\boldsymbol{\delta} \qquad (\forall \,\underline{x} \in I_{i}) \qquad (4.124c)$$

$$\llbracket \boldsymbol{\sigma} \rrbracket \cdot \underline{n} + \sigma \operatorname{tr} \boldsymbol{b}_{i\underline{n}} = \underline{0}$$
(4.124d)

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = 0 \tag{4.124e}$$

Nous avons besoin ensuite d'estimer la valeur prise par la grandeur \tilde{d} au sein du domaine occupé par la phase fluide dans le VER. Pour cela, nous adoptons une estimation du module sécant uniforme par phase. L'influence des hétérogénéités à l'intérieur de la phase fluide sur le comportement macroscopique de la suspension est donc négligée. Cette estimation s'écrit :

$$\tilde{\mu}(\tilde{d}(\underline{x})) = \tilde{\mu}(\tilde{d}^{eff}) \tag{4.125}$$

Par ailleurs nous avons l'estimation du module sécant macroscopique qui s'écrit :

$$\tilde{\mu}^{hom}(\varphi, \tilde{D}) = g(\varphi)\tilde{\mu}(\tilde{d}^{eff})$$
(4.126)

En reportant directement les équations (4.118), (4.120) dans (4.126), nous pouvons écrire :

$$\tilde{\mu}^{hom}(\varphi, \tilde{D}) = g(\varphi)\tilde{\mu}(\sqrt{\frac{g(\varphi)}{(1-\varphi)}}\tilde{D})$$
(4.127a)

$$\frac{\tau_c^{hom}(\varphi)}{\tilde{D}} + \eta(\varphi)\tilde{D}^{n-1} = g(\varphi)(\frac{\tau_c}{\sqrt{\frac{g(\varphi)}{(1-\varphi)}}\tilde{D}} + \eta(\sqrt{\frac{g(\varphi)}{(1-\varphi)}}\tilde{D})^{n-1})$$
(4.127b)

$$\frac{\tau_c^{hom}}{\tilde{D}} + \eta^{hom}(\varphi)\tilde{D}^{n-1} = \frac{\tau_c}{\tilde{D}}\sqrt{g(\varphi)(1-\varphi)} + \eta g(\varphi)(\frac{g(\varphi)}{1-\varphi})^{\frac{n-1}{2}}\tilde{D}^{n-1}$$
(4.127c)

A partir de l'équation (4.127c), nous obtenons finalement l'estimation de la contrainte seuil et de l'indice de consistance de la suspension à l'échelle macroscopique :

$$\tau_c^{hom}(\varphi) = \tau_c \sqrt{g(\varphi)(1-\varphi)}$$
(4.128a)

$$\eta^{hom}(\varphi) = \eta g(\varphi) \left(\frac{g(\varphi)}{1-\varphi}\right)^{\frac{n-1}{2}}$$
(4.128b)

Ce résultat ne dépend pas du schéma d'homogénéisation retenu pour relier la viscosité du fluide porteur à la viscosité de la suspension. La qualité de la prédiction ne dépend que de la validité de l'approximation consistant à remplacer le champs $\tilde{\mu}(\underline{x}, \tilde{d}(\underline{x}))$ par sa valeur moyenne $\tilde{\mu}(\tilde{d}^{eff})$.

4.3.1.1 Application au schéma dilué

Dans le paragraphe (4.2.2) nous avons montré que pour le schéma dilué ($\varphi \ll 1$) l'estimation du module de viscosité macroscopique d'une suspension de bulle dans une matrice de comportement linéaire homogène isotrope pour les deux cas limites ($Ca \rightarrow \infty$ et $Ca \rightarrow 0$) est donnée par les formules :

$$\mu_{DL,Ca\to\infty}^{hom}(\varphi) = \mu(1 - \frac{5}{3}\varphi) \tag{4.129a}$$

$$\mu_{DL,Ca\to0}^{hom}(\varphi) = \mu(1+\varphi) \tag{4.129b}$$

Selon (4.118), nous écrivons le cœfficient $g(\varphi)$ dans ces cas :

$$g_{DL,Ca\to\infty} = 1 - \frac{5}{3}\varphi \tag{4.130a}$$

$$g_{DL,Ca\to 0} = 1 + \varphi \tag{4.130b}$$

En développant à l'ordre 1 en φ , nous obtenons les estimations de la contrainte seuil et de la consistance à l'échelle macroscopique d'une suspension de bulles dans un fluide de Herschel-Bukley pour ces deux cas :

$$\tau_{c(DL,Ca\to\infty)}^{hom} \approx \tau_c (1 - \frac{4}{3}\varphi)$$
 (4.131a)

$$\tau_{c(DL,Ca\to 0)}^{hom} \approx \tau_c \tag{4.131b}$$

4.3.1.2 Application au schéma de Mori-Tanaka

Dans le paragraphe (4.2.3) nous avons montré que pour le schéma de Mori-Tanaka l'estimation du module de viscosité macroscopique d'une suspension de bulles dans une matrice de comportement linéaire homogène isotrope pour les deux cas limites ($Ca \rightarrow \infty$ et $Ca \rightarrow 0$) est donnée par les formules :

$$\mu_{MT,Ca\to\infty}^{hom} = \mu \frac{3(1-\varphi)}{3+2\varphi}$$
(4.132a)

$$\mu_{MT,Ca\to 0}^{hom} = \mu \frac{5+3\varphi}{5-2\varphi}$$
(4.132b)

Selon (4.118), nous écrivons le cœfficient $g(\varphi)$ dans ces cas :

$$g_{MT,Ca\to\infty} = \frac{3(1-\varphi)}{3+2\varphi} \tag{4.133a}$$

$$g_{MT,Ca\to0} = \frac{5+3\varphi}{5-2\varphi} \tag{4.133b}$$

En reportant (4.133a) et (4.133b) dans (4.128a) nous obtenons :

$$\tau_{c(MT,Ca\to\infty)}^{hom} = \tau_c \sqrt{\frac{3(1-\varphi)^2}{3+2\varphi}}$$
(4.134a)

$$\tau_{c(MT,Ca\to 0)}^{hom} = \tau_c \sqrt{(1-\varphi)\frac{5+3\varphi}{5-2\varphi}}$$
 (4.134b)

4.4 Validation expérimentale

4.4.1 Module élastique de la suspension



FIGURE 4.6 – Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles. Rouge : prédiction pour $Ca \rightarrow 0$, noir : prédiction pour $Ca \rightarrow \infty$, disques pleins : bulles de 41 μ m - Forafac, croix : bulles de 50 μ m - SDS, losange : bulles de 1000 μ m - TTAB.

Nous représentons sur la figure (4.6) la comparaison des prédictions théoriques aux résultats expérimentaux de Lucie Ducloué [29] décrits dans (2.3). La ligne rouge représente l'estimation diluée pour le cas où les bulles sont indéformables tandis que la ligne noire décrit l'estimation diluée pour le cas où les bulles sont très déformables. Les points expérimentaux sont les valeurs extrêmes de Ca_{elast} que Lucie Ducloué a pu atteindre avec ses systèmes expérimentaux. Nous constatons que tous les points expérimentaux se situent entre les deux bornes de l'estimation diluée, ce qui montre un bon accord entre théorie et expérience pour trois systèmes d'émulsions. Nous trouvons que l'estimation théorique à $Ca_{elast} \rightarrow \infty$ est déjà satisfaisante aux valeurs de $Ca_{elast} \simeq 20$ (pour la suspension de bulles de 1000μ m).

Les trois graphiques a, b, c sur la figure (4.7) représentent la comparaison entre le module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles estimé dans le schéma de



FIGURE 4.7 – (a), (b), (c) : Comparaison entre le module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles estimé dans le schéma de Mori-Tanaka (en trait plein sur les graphes) et les valeurs expérimentales des suspensions mesurées par Lucie Ducloué [29] : (a) Influence du rayon des bulles ; (b) Influence du module élastique de l'émulsion interstitielle ; (c) Influence de la tension de surface ; (d) Comparaison entre module élastique estimé pour le schéma de Mori-Tanaka et module élastique mesuré sur 8 suspensions faites par Lucie Ducloué [29]. La ligne noir est le tracée de la fonction y = x.

Mori-Tanaka et les valeurs expérimentales des suspensions mesurées par Lucie Ducloué [29]. Le graphique *a* présente l'influence du rayon de la bulle sur le module de cisaillement adimen-



FIGURE 4.8 – Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles pour des suspensions de bulles de 50 μ m dans l'émulsion 4a et de 150 μ m dans l'émulsion 4b. Les courbes en trait plein sont les estimations du module élastique adimensionné de Mori-Tanaka. Données expérimentales d'après Lucie Ducloué [29].

sionné en fonction de φ . Les points expérimentaux sont les données de trois tailles des bulles (50 μ m, 143 μ m et 800 μ m) dans une même émulsion (émulsion 1). Nous constatons que le module de cisaillement adimensionné de la suspension diminue quand le rayon des bulles dans l'émulsion augmente. Nous obtenons un bon accord entre théorie et expérience pour deux tailles des bulles dans l'émulsion 1 (bulles de 143 μ m et bulles de 800 μ m). Pour la suspension de bulles de 50 μ m, la situation est moins satisfaisante. Cette différence est peut-être dû à la plus grande polydispersité des bulles employées pour ces suspensions (d'après [29]).

Le graphique *b* représente l'influence du module de cisaillement de l'émulsion interstitielle sur le comportement des suspensions. Les points expérimentaux sont des modules élastiques adimensionnés de deux suspensions : bulles de 150 μ m dans l'émulsion 1 (avec SDS comme tensio-actif) et bulles de 150 μ m dans l'émulsion 4b (avec TTAB comme tensio-actif). Le module élastique de l'émulsion 1 et de l'émulsion 4b sont respectivement égaux à 285 Pa et 799 Pa. Nous voyons que pour la même taille de bulles, les suspensions sont plus « rigides » quand le module élastique de l'émulsion interstitielle diminue. L'estimation théorique reproduit bien la tendance du comportement des suspensions étudiées expérimentalement.

L'influence de la tension de surface sur le comportement des suspensions est représentée sur le graphe c de la figure (4.7). Les valeurs du module de cisaillement ont été mesurées pour les suspensions de bulles de 143 μ m (dont la tension de surface est égale à 36 mN/m) dans l'émulsion 1 et de bulles de 129 μ m (dont la tension de surface est égale à 15,5 mN/m) dans l'émulsion 2b. Les nombres capillaires Ca_{elas} de ces deux suspensions sont respectivement égaux à 1,13 et 1,35. Le trait plein est le tracé de l'estimation du schéma de Mori-Tanaka pour $Ca_{elast} = 1, 26$. Nous trouvons que l'évolution du module élastique adimensionné avec φ est analogue pour ces deux



FIGURE 4.9 – Système à grands nombres capillaires : module de cisaillement adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulles. Courbe marron : estimation de Mori-Tanaka pour $Ca \rightarrow \infty$. Losanges bleus pleins : bulles de 1000 μ m. Losanges verts : bulles de 150 μ m. Données expérimentales d'après Lucie Ducloué [29].

systèmes.

Nous constatons sur le graphe d de la figure (4.7) un très bon accord entre module de cisaillement estimé par homogénéisation et module de cisaillement des huit suspensions de bulles mesurées par Lucie Ducloué.

Nous traçons sur la figure (4.9) la comparaison entre le module de cisaillement adimensionné mesurés expérimentalement par Ducloué et le module de cisaillement adimensionné donné par l'estimation théorique $(1 - \varphi)/(1 + 2/3\varphi)$ du cas $Ca_{elast} \rightarrow \infty$. Nous trouvons que les valeurs expérimentales sont compatibles avec la prédiction du schéma de Mori-Tanaka : elles se réunissent sur une même courbe.

4.4.2 Contrainte seuil de la suspension

Nous avons présenté sur la figure (4.10) la comparaison entre prédiction d'homogénéisation et résultats expérimentaux de la contrainte seuil adimensionnée en fonction de φ de 7 systèmes d'émulsions étudiées par Lucie Ducloué décrits dans (2.3). Nous constatons sur cette figure que l'ajout de bulles ne modifie pratiquement pas la contrainte seuil de la suspension pour les valeurs de la fraction volumique en bulles inférieures à 50 %. Nous retrouvons évidemment la même tendance que pour l'estimation de Mori-Tanaka (4.134b) quand le nombre capillaire dans le régime plastique tend vers 0. Pour justifier ce point nous formons un nombre capillaire qui est défini comme le rapport de la contrainte seuil du matériau suspendant sur la pression capillaire régnant dans la bulle :

$$Ca_{plas} = \frac{\tau_c(0)}{\gamma/a} \tag{4.135}$$

Pour tous les systèmes présentés sur (4.10), ce rapport est très faible (entre 0,0138 et 0,22).



FIGURE 4.10 – Seuil de contrainte adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulle. Courbe marron : estimation de Mori-Tanaka pour $Ca \rightarrow 0$. Les points expérimentaux sont mesurés pour 7 systèmes d'émulsions étudiées par Lucie Ducloué [29].

La figure (4.11) représente la comparaison entre prédiction théorique et résultats expérimentaux de la contrainte seuil adimensionnée en fonction de φ (données expérimentales d'après Lucie Ducloué [29]) pour les bulles de 1000 μ m. Les mesures de contrainte seuil adimensionnée pour les 7 autres systèmes d'émulsions sont rappelées sur ce graphique pour comparaison. Nous pouvons voir que la contrainte seuil adimensionné de la suspension des bulles de 1000 μ m (dont Ca_{plas} est égale à 1,14) diminue avec la fraction volumique en bulles. Nous observons que la tendance de ces points expérimentaux suit la courbe tracée de l'estimation de Mori-Tanaka dans le cas où le nombre capillaire plastique tend vers l'infini. Nous trouvons que l'estimation théorique dans ce cas est déjà cohérente avec les points expérimentaux à Ca = 1, 14.



FIGURE 4.11 – Seuil de contrainte adimensionné en fonction de la fraction volumique en bulle. Courbe rouge : estimation de Mori-Tanaka pour $Ca \rightarrow \infty$. Losanges bleus : bulles de 1000 μ m. Les valeurs mesurées sur les autres systèmes d'émulsions sont rappelées pour comparaison. Données d'après Lucie Ducloué [29].
Chapitre 5

Conclusion

Cette thèse a été consacrée à l'étude du comportement d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil dans le cadre d'une approche expérimentale et de méthodes de changement d'échelles.

Pour le travail expérimental, nous avons formulé un fluide à seuil modèle et fabriqué un dispositif pour l'étude du cisaillement d'une bulle dans un fluide à seuil. Nous avons effectué les premiers essais et obtenu les premiers résultats sur la déformabilité d'une bulle cisaillée dans un gel de Carbopol.

Afin de prédire les caractéristiques globales d'une suspension de bulles dans un fluide à seuil, nous avons mis en œuvre une approche micro-mécanique. Tout d'abord, nous avons construit la solution décrivant le comportement d'une bulle isolée dans un matériau linéaire déformé avec prise en compte des effets de tension superficielle. En partant de la solution établie par Palierne [50] pour problème d'une bulle avec tension de surface suspendue dans un domaine infini constitué d'un matériau homogène à comportement linéaire cisaillé à l'infini, nous avons généralisé les approches « classiques » de l'homogénéisation des milieux hétérogènes à comportement linéaire. Nous avons donc donné les estimations du comportement de la suspension dans le cas des schéma dilué, Mori-Tanaka et autocohérent. Ces modèles nous ont permis de retrouver que dans le régime élastique le module élastique macroscopique de la suspension dépend du nombre capillaire Ca_{elast} défini comme le rapport entre le module de cisaillement du fluide porteur et la pression capillaire de la bulle. Ce nombre quantifie la déformabilité de la bulle par rapport à la déformabilité de la matrice dans laquelle elle est immergée. A fraction volumique en bulles donnée, le module élastique macroscopique de la suspension est d'autant plus grand que les bulles sont déformables et donc que le nombre capillaire est grand. Pour les trois schémas, les bulles ont un effet renforçant si $Ca_{elast} < 1/2$ (cas des bulles peu déformables) ou au contraire assouplissant si $Ca_{elast} > 1/2$ (cas des bulles très déformables). Ensuite dans le but de mieux prendre en compte les interactions entre bulles à plus grande fraction volumique en bulle nous avons mis en œuvre une approche par motifs morphologiques.

Les caractéristiques non linéaires globales de la suspension ont été estimées en utilisant une méthode d'homogénéisation sécante modifiée [60]. Le point important dans cette méthode

est d'écrire le comportement de suspension sous une forme linéaire en faisant apparaître une viscosité apparente ou un module sécant. Dans le cas d'une suspension monodisperse de bulles dans un fluide rigide-plastique, le comportement macroscopique prédit est du type élasto-plastique. Le modèle prédit que le seuil d'écoulement de la suspension est égal au seuil d'écoulement du fluide porteur quelle que soit la taille des bulles.

Ces estimations théoriques ont été validées par comparaison avec les résultats expérimentaux de la thèse de Lucie Ducloué [29] obtenus en utilisant une procédure permettant de se rapprocher au mieux des hypothèses formulées pour élaborer le modèle.

Bibliographie

- [1] Andreas Acrivos and TS Lo. Deformation and breakup of a single slender drop in an extensional flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 86(04):641–672, 1978.
- [2] J. Assaad and K.H. Khayat. Variations of lateral and pore water pressure of selfconsolidating concrete at early age. *ACI Materials Journal*, 101(4), 2004.
- [3] S. Assighaou and L. Benyahia. Universal retraction process of a droplet shape after a large strain jump. *Physical Review E*, 77(3, Part 2), MAR 2008.
- [4] S. Assighaou and L. Benyahia. Universal retraction process of a droplet shape after a large strain jump. *Physical Review E*, 77(3) :036305, 2008.
- [5] PFG Banfill and DC Saunders. On the viscometric examination of cement pastes. *Cement and Concrete Research*, 11(3):363–370, 1981.
- [6] GK Batchelor and JT Green. The determination of the bulk stress in a suspension of spherical particles to order c2. *Journal of Fluid Mechanics*, 56(03) :401–427, 1972.
- [7] L. Bécu. Fluides complexes sous cisaillement : rhéologie locale, écoulements inhomogènes et dynamiques spatio-temporelles. PhD thesis, Ph. D. Thesis, Université de Bordeaux I, 2005.
- [8] L. Bécu, S. Manneville, and A. Colin. Yielding and flow in adhesive and nonadhesive concentrated emulsions. *Physical review letters*, 96(13):138302, 2006.
- [9] B.H. Birkhofer, J.C. Eischen, D. Megias-Alguacil, P. Fischer, and E.J. Windhab. Computercontrolled flow cell for the study of particle and drop dynamics in shear flow fields. *Industrial & engineering chemistry research*, 44(17):6999–7009, 2005.
- [10] O. Blaj, P. Merzeau, P. Snabre, and B. Pouligny. An automated single-particle tracker : application to characterization of non-azimuthal motion in couette flows at low reynolds number. *Experiments in fluids*, pages 1–12, 2011.
- [11] Michel Bornert. Morphologie microstructurale et comportement mécanique; caractérisations expérimentales, approches par bornes et estimations autocohérentes généralisées. PhD thesis, École Nationale des Ponts et Chaussées, 1996.
- [12] J Boujlel and P Coussot. Measuring the surface tension of yield stress fluids. *Soft Matter*, 9(25):5898–5908, 2013.
- [13] JD Buckmaster. Pointed bubbles in slow viscous flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 55(03):385–400, 1972.

- [14] Eduardo L Canedo, Moshe Favelukis, Zehev Tadmor, and Yeshayahu Talmon. An experimental study of bubble deformation in viscous liquids in simple shear flow. *AIChE journal*, 39(4):553–559, 1993.
- [15] Isabelle Cantat, Sylvie Cohen-Addad, Florence Elias, François Graner, Reinhard Höhler, Olivier Pitois, François Rouyer, Arnaud Saint-Jalmes, et al. *Les mousses : structure et dynamique*. 2010.
- [16] Pedro Ponte Castaneda and Pierre Suquet. Nonlinear composites. Advances in applied mechanics, 34(998):171–302, 1998.
- [17] Xavier Chateau and Luc Dormieux. Homogénéisation d'un milieu poreux non saturé : lemme de hill et applications. *Comptes rendus de l'Académie des sciences*. Série II, Mécanique, physique, chimie, astronomie, 320(12):627–634, 1995.
- [18] Xavier Chateau, Luc Dormieux, and Yue Xu. Évaluation de l'influence des changements de géométrie sur les déformations de séchage d'un milieu poreux fissuré. *Comptes Rendus Mécanique*, 331(10):679–686, 2003.
- [19] Xavier Chateau, Guillaume Ovarlez, and Kien Luu Trung. Homogenization approach to the behavior of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *JOURNAL OF RHEOLOGY*, 52(2) :489–506, MAR-APR 2008.
- [20] Seung Jung Choi and WR Schowalter. Rheological properties of nondilute suspensions of deformable particles. *Physics of Fluids* (1958-1988), 18(4) :420–427, 1975.
- [21] RM Christensen and KH Lo. Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 27(4) :315–330, 1979.
- [22] COUSSOT.P. *Rheometry of Paste, Suspensions and Granular Materials*. John Wiley & Son, New York, 2005.
- [23] Olivier Coussy. Mechanics and physics of porous solids. John Wiley & Sons, 2011.
- [24] RG Cox. The deformation of a drop in a general time-dependent fluid flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 37(03):601–623, 1969.
- [25] Francois De Larrard. *Concrete mixture proportioning : a scientific approach*. CRC Press, 1999.
- [26] Morton M Denn and Jeffrey F Morris. Rheology of non-brownian suspensions. *Annual review of chemical and biomolecular engineering*, 5 :203–228, 2014.
- [27] Luc Dormieux, Djimédo Kondo, and Franz-Josef Ulm. *Microporomechanics*. John Wiley & Sons, 2006.
- [28] N. Dubash and IA Frigaard. Propagation and stopping of air bubbles in carbopol solutions. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, 142(1-3):123–134, 2007.
- [29] Lucie Ducloué. *Comportement rhéologique des fluides à seuil aérés*. PhD thesis, Paris Est, 2014.

- [30] Lucie Ducloué, Olivier Pitois, Julie Goyon, Xavier Chateau, and Guillaume Ovarlez. Rheological behaviour of suspensions of bubbles in yield stress fluids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 215 :31–39, 2015.
- [31] Albert Einstein. Eine neue bestimmung der moleküldimensionen. *Annalen der Physik*, 324(2):289–306, 1906.
- [32] Philippe COUSSOT et Christophe ANCEY. *Rhéophysique des pâtes et des suspension*. EDP Sciences, 1999.
- [33] NA Frankel and Andreas Acrivos. The constitutive equation for a dilute emulsion. *Journal* of *Fluid Mechanics*, 44(01):65–78, 1970.
- [34] J. Goyon, F. Bertrand, O. Pitois, and G. Ovarlez. Shear induced drainage in foamy yieldstress fluids. *Physical review letters*, 104(12):128301, 2010.
- [35] EJ Hinch. The evolution of slender inviscid drops in an axisymmetric straining flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 101(03):545–553, 1980.
- [36] Sung Wu Joh, Seung Hwan Lee, and Jae Ryoun Youn. Rheological behavior of polydispersed bubble suspensions in shear flows. *Polymer Engineering & Science*, 50(1) :128–137, 2010.
- [37] Wolfgang Kreher. Residual stresses and stored elastic energy of composites and polycrystals. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 38(1):115–128, 1990.
- [38] Irvin M Krieger and Thomas J Dougherty. A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Transactions of The Society of Rheology* (1957-1977), 3(1):137–152, 1959.
- [39] Ronald G Larson. The structure and rheology of complex fluids (topics in chemical engineering). RG Larson.1998.688 p, 1998.
- [40] Élisabeth Guazzelli. Rhéologie des fluides complexes. Technical report, Octobre 2001.
- [41] Didier Lootens. *Ciments et suspensions concentrées modèles. Écoulement, encombrement et floculation.* PhD thesis.
- [42] C. Mabille and J. Bibette. Fragmentation des émulsions dans un écoulement de cisaillement simple. 2000.
- [43] C. Mabille, V. Schmitt, P. Gorria, F.L. Calderon, V. Faye, B. Deminiere, and J. Bibette. Rheological and shearing conditions for the preparation of monodisperse emulsions. *Lang-muir*, 16(2):422–429, 2000.
- [44] CW Macosko and Jan Mewis. Suspension rheology. status : published, 1994.
- [45] Fabien Mahaut. Comportement rhéologique de suspensions de particules non colloïdales plongées dans des fluides à seuil. PhD thesis, Paris Est, 2009.
- [46] Fabien Mahaut, Xavier Chateau, Philippe Coussot, and Guillaume Ovarlez. Yield stress and elastic modulus of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology (1978-present)*, 52(1):287–313, 2008.
- [47] Jan Mewis and Norman J Wagner. *Colloidal suspension rheology*. Cambridge University Press, 2011.

- [48] F.K. Oppong, L. Rubatat, B.J. Frisken, A.E. Bailey, and J.R. de Bruyn. Microrheology and structure of a yield-stress polymer gel. *Physical Review E*, 73(4) :041405, 2006.
- [49] Patrique Oswald. Rhéophysique Ou comment coule la matière. Edition BELIN, 2005.
- [50] JF Palierne. Linear rheology of viscoelastic emulsions with interfacial tension. *Rheologica Acta*, 29(3) :204–214, 1990.
- [51] JM Rallison. Note on the time-dependent deformation of a viscous drop which is almost spherical. *Journal of Fluid Mechanics*, 98(03) :625–633, 1980.
- [52] JM Rallison. The deformation of small viscous drops and bubbles in shear flows. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 16(1):45–66, 1984.
- [53] JM Rallison and Andrias Acrivos. A numerical study of the deformation and burst of a viscous drop in an extensional flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 89(01) :191–200, 1978.
- [54] AC Rust and M Manga. Bubble shapes and Orientations in low Re simple shear flow. *JOURNAL OF COLLOID AND INTERFACE SCIENCE*, 249(2) :476–480, MAY 15 2002.
- [55] AC Rust and Michael Manga. Effects of bubble deformation on the viscosity of dilute suspensions. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 104(1):53–63, 2002.
- [56] Jean Salençon. *Handbook of Continuum Mechanics : General Concepts-Thermoelasticity*. Springer Science & Business Media, 2001.
- [57] Gabriel O Shonaike and George P Simon. *Polymer blends and alloys*, volume 52. CRC Press, 1999.
- [58] Robert W Style, Rostislav Boltyanskiy, Benjamin Allen, Katharine E Jensen, Henry P Foote, John S Wettlaufer, and Eric R Dufresne. Stiffening solids with liquid inclusions. *Nature Physics*, 11(1):82–87, 2015.
- [59] Robert W Style, John S Wettlaufer, and Eric R Dufresne. Surface tension and the mechanics of liquid inclusions in compliant solids. *Soft matter*, 11(4):672–679, 2015.
- [60] Pierre Suquet. Continuum micromechanics. Springer-Verlag New York, Inc., 1997.
- [61] G.I. Taylor. The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 138(834):41–48, 1932.
- [62] GI Taylor. The formation of emulsions in definable fields of flow. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, 146(858) :501, 1934.
- [63] GI Taylor. Conical free surfaces and fluid interfaces. In *Applied Mechanics*, pages 790–796. Springer, 1966.
- [64] D.C. Tretheway and L.G. Leal. Deformation and relaxation of newtonian drops in planar extensional flows of a boger fluid. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, 99(2-3):81– 108, 2001.
- [65] Thai-Son Vu, Guillaume Ovarlez, and Xavier Chateau. Macroscopic behavior of bidisperse suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *JOURNAL OF RHEOLOGY*, 54(4):815–833, JUL-AUG 2010.

[66] A Zaoui. Changement d'échelle : motivation et méthodologie. *Homogénéisation en mécanique des matériaux, Tome 1 : Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques,* pages 19–39, 2001.