

Rôle des contacts dans la rhéologie des suspensions non-browniennes concentrées.

E. LEMAIRE^a, F. BLANC^a, E. D'AMBROSIO^a, L. LOBRY^a, F. PETERS^a,
S. GALLIER^b

a. InPhyNi UMR 7010 CNRS UCA elemaire@unice.fr

b. ArianeGroup, Centre du Bouchet

...

Résumé :

Nous illustrons par quelques exemples tirés d'expériences ou de simulations numériques le rôle joué par les forces de contact solide entre particules dans la rhéologie de suspensions concentrées. Nous montrons d'abord comment la mesure de la microstructure d'une suspension cisailée permet d'affirmer que de tels contacts existent. Nous décrivons ensuite l'influence de ces contacts, en particulier lorsqu'ils sont frictionnels, sur la valeur de la viscosité de suspensions concentrées et proposons une méthode expérimentale basée sur des expériences d'inversion du cisaillement pour évaluer la part de la contribution des forces de contact dans la viscosité. Nous discutons ensuite de la rhéofluidification observée dans la plupart des suspensions et montrons qu'une friction variable, dépendant de la contrainte subie par la suspension, permet de rendre compte des mesures expérimentales. Enfin, nous abordons le cas de suspensions plus complexes formées de particules anguleuses dispersées dans un liquide newtonien et nous montrons qu'une fois encore la prise en compte de la contribution des contacts à la viscosité globale permet de mieux comprendre leur comportement.

Abstract :

We illustrate with some examples from experiments or numerical simulations the role played by solid contact forces between particles in the rheology of concentrated suspensions. We first show how the measurement of the microstructure of a sheared suspension makes it possible to affirm that such contacts exist. We then describe the influence of these contacts, particularly when they are frictional, on the viscosity value of concentrated suspensions and propose an experimental method based on shear reversal experiments to evaluate the contribution of contact forces in the viscosity. We then discuss the shear-thinning observed in most concentrated non-Brownian suspensions and show that a variable friction, depending on the stress felt by the suspension, makes it possible to account for the experimental measurements. Finally, we consider the case of more complex suspensions formed of sharp-edged particles dispersed in a Newtonian liquid and we show that, again, taking into account the contribution of the contacts to the overall viscosity leads to a better understand of their behavior.

Mots clefs : Suspensions non-browniennes concentrées, Friction, Rhéofluidification, Inversion de cisaillement.

1 Introduction

L'étude des suspensions concentrées non-browniennes a connu ces dix dernières années un renouveau remarquable en particulier avec la mise en évidence de l'importance du rôle joué par les forces de contact solide entre particules dans la rhéologie des suspensions. Les suspensions concentrées interviennent dans des domaines nombreux et variés qui vont des écoulements naturels (glissements de terrains, laves torrentielles, circulation sanguine...) aux écoulements industriels (coulées de béton, moulage des propegols, mise en forme de composites...). Ces suspensions « réelles » ont souvent des comportements rhéologiques complexes (migration induite par un écoulement, thixotropie, rhéoépaississement, rhéofluidification...) qu'on est tenté d'imputer à leur formulation, elle-même complexe. Cependant, la plupart de ces comportements se retrouvent dans des suspensions modèles de laboratoire où le fluide suspendant est newtonien et les particules sphériques quasi-monodisperses et iso-denses.

Pendant longtemps, l'étude de la rhéologie des suspensions s'est focalisée sur l'effet des forces hydrodynamiques à courte (lubrification) et longue portée sur les propriétés d'écoulement. Ainsi, Batchelor [1] étendit les travaux d'Einstein pour prendre en compte la contribution des interactions hydrodynamiques à deux particules puis des travaux numériques [2, 3] s'intéressèrent à des régimes plus concentrés dans lesquels les interactions de paires n'étaient pas suffisantes pour décrire la rhéologie. Les simulations numériques ont ainsi permis de retrouver une caractéristique importante de la viscosité des suspensions : son augmentation quand la fraction volumique de particules augmente et sa divergence pour une fraction volumique particulière appelée fraction de blocage. Cependant, ces simulations prévoient une viscosité indépendante du taux (ou de la contrainte) de cisaillement et une loi universelle de la variation de la viscosité avec la fraction volumique de particules. Or, les mesures expérimentales montrent que la plupart des suspensions concentrées sont rhéofluidifiantes et que, d'un système expérimental à l'autre, la fraction de blocage peut varier dans un large intervalle, typiquement entre 0.53 et 0.64. Ce n'est que récemment [4, 5] que les simulations ont introduit explicitement les lois de contact direct (solide) entre particules et montré une grande sensibilité de la rhéologie à ces contacts.

Lors de mon exposé, j'aborderai quelques aspects récents de la physique des écoulements de suspensions non-browniennes en m'appuyant sur des expériences et des simulations. Je montrerai comment des mesures directes de la microstructure induite par un écoulement confirment l'existence de contacts directs entre particules via les rugosités de surface. Je discuterai ensuite, à travers des résultats de simulation numérique, de l'influence des forces de contact et en particulier de la friction sur le comportement rhéologique des suspensions. Enfin, je terminerai en présentant quelques expériences qui permettent d'estimer la contribution des forces de contact à la viscosité totale d'une suspension et montrerai l'intérêt de ces expériences pour l'étude d'une suspension de particules facettées.

2 Contacts solides entre particules.

2.1 Contexte

Pendant longtemps, on a pensé que les forces de lubrification qui divergent quand la distance qui sépare les surfaces de deux particules tend vers zéro interdisaient tout contact solide entre particules mais c'était sans compter avec les rugosités de surface des particules. Ces aspérités, présentes à la

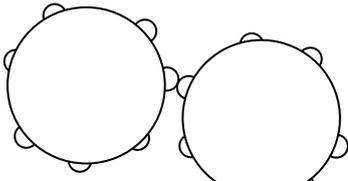


Figure 1. Dans une suspension, les rugosités de surface des particules autorisent le contact tout en maintenant des forces de lubrification fines.

surface de n'importe quelles particules, permettent d'activer un contact tout en maintenant des forces de lubrification fines.

La taille des rugosités peut varier d'un type de particules à un autre. Cependant, pour des particules usuelles comme le polystyrène ou le PMMA, la hauteur des rugosités est de l'ordre du millième du rayon des particules : $h_r \approx 10^{-3}a$. Ainsi, il est difficile de mettre directement en évidence la présence de contact dans une suspension sous écoulement.

Cependant, nous allons voir qu'il est possible d'observer une signature claire des contacts quand on étudie la microstructure d'une suspension cisailée.

2.2 Fonctions de distributions de paires

Pour étudier la microstructure sous cisaillement, nous avons utilisé une suspension transparente (adaptation des indices de réfraction des particules et du liquide) constituée de particules de PMMA (Arkema, BS510) d'un diamètre moyen de $180\mu\text{m}$ dispersées dans une huile minérale synthétisée à façon par société Cargille pour qu'elle ait la même densité (1.18) et le même indice de réfraction (1.49) que les particules de PMMA. Un fluorochrome (Nile Blue A) est ajouté au liquide suspendant. La suspension est introduite dans un rhéomètre Mars II (Thermofisher) équipé d'une géométrie de Couette cylindrique (rayon interne $R_i=19\text{ mm}$, rayon externe $R_e=24\text{ mm}$) fabriquée en PMMA. Elle est éclairée par une nappe laser dans le plan de cisaillement $(\mathbf{V}, \nabla\mathbf{v})$ et une caméra placée sous la cellule de Couette permet de recueillir les images de la suspension [6].

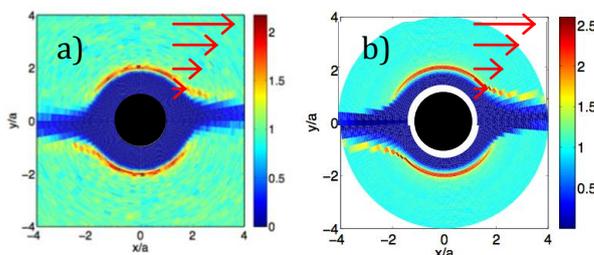


Figure 2. Fonction de distribution de paires expérimentale (a) et théorique (b) obtenue pour une suspension de concentration 5%.

En particulier, on a accès à la position des particules desquelles on peut déduire la fonction de distribution de paire (pdf), $g(r, \theta)$:

$$g(r, \theta) = \frac{P(r, \theta | r=0)}{n}$$

où $P(r, \theta | r=0)$ est la probabilité de trouver une particule dont le centre est à la position (r, θ) d'une autre particule et où n est le nombre de particules par unité de volume.

La figure 2(a) montre la pdf obtenue pour une suspension de concentration 5%. On note en particulier que la pdf est asymétrique par rapport à la direction du gradient de vitesse. Cette asymétrie montre en outre qu'il existe des forces qui ne sont pas d'origine hydrodynamique. En effet, dans l'hypothèse où seules des forces hydrodynamiques sont présentes, le mouvement des particules est régi par l'équation de Stokes :

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\nu} = 0$$

Ce qui implique que les trajectoires des particules doivent être symétriques par rapport à la direction du gradient de vitesse et par conséquent que la pdf doit être aussi symétrique.

Ainsi l'asymétrie de la pdf (figure 2(a)) indique la présence de forces non hydrodynamiques. Nous avons vérifié que les particules utilisées ne présentaient pas de forces colloïdales significatives et en

avons déduit que les seules forces non-hydrodynamiques qui pouvaient être présentes dans la suspension étaient des forces de contact.

Pour aller plus loin dans la description des contacts entre particules, il est possible de calculer la trajectoire de particules ayant une rugosité non nulle lors d'une « collision » dans un écoulement de cisaillement simple. Nous avons pour cela utilisé un modèle proposé par Da Cunha & Hinch [7] et avons déduit des trajectoires la pdf théorique (figure 2(b)). Le seul paramètre libre du modèle de Da Cunha & Hinch est la hauteur des rugosités et le meilleur accord entre pdf théorique et pdf expérimentale a été obtenu pour une hauteur de rugosité de 255 nm, à comparer à l'évaluation de la hauteur moyenne des rugosités déterminée par microscopie à force atomique, 200 nm [6].

Ces mesures de pdf prouvent l'existence de contacts solides entre particules dans une suspension cisailée. Ces mesures ont depuis été confirmées par la détermination directe de trajectoires de particules de rugosité contrôlée et variable [8].

3 Influence des contacts sur la rhéologie.

3.1 Influence de la friction.

L'existence de contacts solides entre particules autorise la friction et nous avons montré par des simulations numériques discrètes [5] que la rhéologie des suspensions était très sensible à la friction. La figure 3(a) montre l'évolution de la viscosité avec la fraction volumique pour différents coefficients de friction microscopiques. On note en particulier que les simulations réalisées avec un coefficient de friction de 0.5 permettent de rendre compte des résultats expérimentaux alors que les simulations réalisées sans frottement ($\mu=0$) sous-estiment très largement les valeurs de viscosité. La figure 3(b) montre que la friction ne modifie quasiment pas la contribution des forces hydrodynamiques à la viscosité totale, η^H . Ainsi, si l'on souhaite caractériser l'influence des contacts sur la viscosité d'une suspension, il sera intéressant de se focaliser sur la viscosité de contact, η^C .

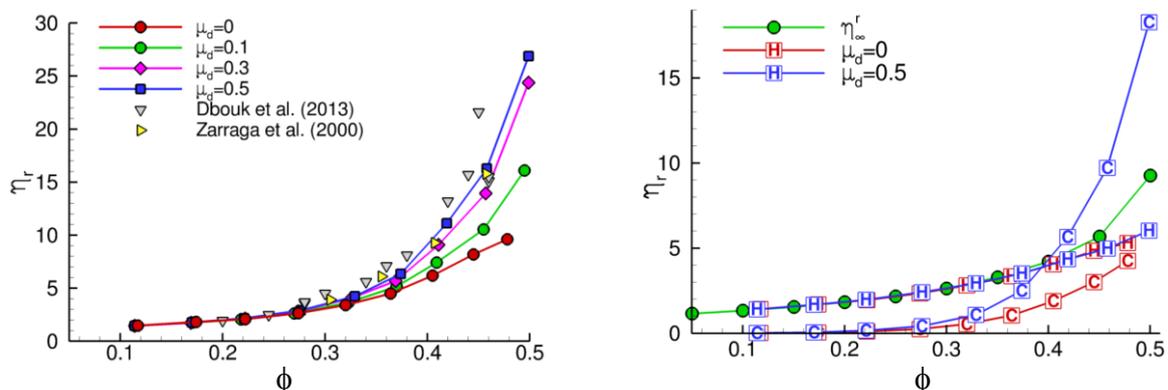


Figure 3. Viscosité relative en fonction de la fraction volumique. a) Influence du coefficient de friction sur la viscosité totale et comparaison avec des résultats expérimentaux. b) part des contributions hydrodynamique et des contacts pour $\mu=0$ et $\mu=0.5$.

3.3 La rhéofluidification expliquée par un coefficient de friction variable.

Comme annoncé dans l'introduction, la plupart des suspensions présentent un comportement rhéofluidifiant quand elles sont assez concentrées (typiquement pour des fractions volumiques

supérieures à 40%). Or nous nous venons de voir que la viscosité d'une suspension concentrée dépendait fortement de la friction entre particules (figure 3(a)). Il est alors tentant de penser que la rhéofluidification pourrait trouver son origine dans une décroissance du coefficient de friction microscopique quand la contrainte de cisaillement augmente. Par ailleurs, au niveau microscopique, cette hypothèse est parfaitement justifiée. En effet, on sait que la friction de surfaces macroscopiques peut être décrite par un coefficient de friction constant quelque soit la force normale car elle met en jeu un grand nombre d'aspérités. En revanche, quand on considère la friction qu'exercent les unes sur les autres les particules d'une suspension, on voit que, compte tenu des faibles valeurs des forces mises en jeu, la friction n'intervient qu'à travers une ou quelques aspérités. Dans ce cas, on s'attend à une décroissance du coefficient de friction au fur et à mesure que la force normale augmente.

Des simulations basées sur la méthode de couplage de forces (FCM) et incluant un coefficient de friction dépendant de la charge ont été effectuées pour diverses fractions volumiques de particules. Les résultats des simulations numériques rendent correctement compte de mesures de viscosité effectuées sur des suspensions de particules de polystyrène (40 μ m de diamètre) dispersés dans un liquide newtonien (figure 4) [9].

3.3 Evaluation de la viscosité de contact

Nous proposons ici une méthode pour tenter de distinguer expérimentalement la part de l'hydrodynamique et des contacts dans la viscosité. Il s'agit d'expériences d'inversion du sens de l'écoulement. La figure 4(a) montre un exemple d'une telle expérience où on voit qu'au moment où l'écoulement change de sens, la viscosité chute brutalement, passe par un minimum pour croître à nouveau vers la valeur qu'elle avait avant l'inversion [10]. On comprend qu'au moment de l'inversion, la microstructure asymétrique de la suspension est brisée pour se reformer selon la nouvelle direction de l'écoulement. Ainsi, en passant d'une microstructure à la microstructure miroir, la suspension transite par un état peu structuré où la probabilité de trouver des particules au contact est faible. On peut alors penser que la viscosité associée à cet état est essentiellement la viscosité hydrodynamique. Plus rigoureusement, nous avons fait des simulations d'inversion d'écoulement qui nous ont permis de montrer que la différence entre la viscosité stationnaire et la viscosité au minimum était égale à 85% de la viscosité de contact [11] (figure 4(b)).

Ainsi les expériences d'inversion de cisaillement permettent d'évaluer les contributions respectives des forces hydrodynamiques et de contact.

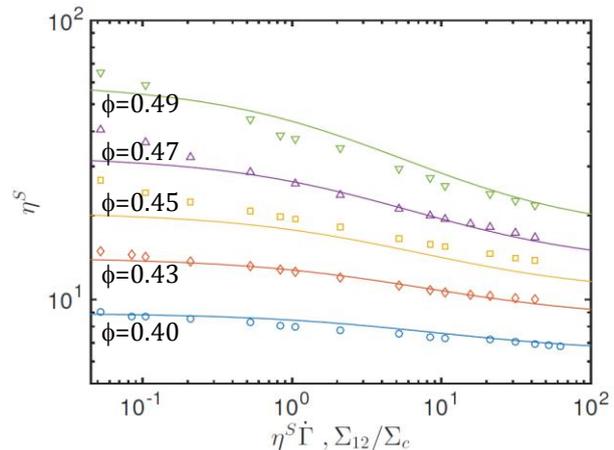


Figure 4. Viscosité relative en fonction de la contrainte de cisaillement normalisée par la contrainte caractéristique de plastification des contacts. Traits : simulations. Symbols : expériences réalisées avec des particules de polystyrène de 40 μ m de diamètre suspendues dans de l'huile silicone de 1Pa.s de viscosité.

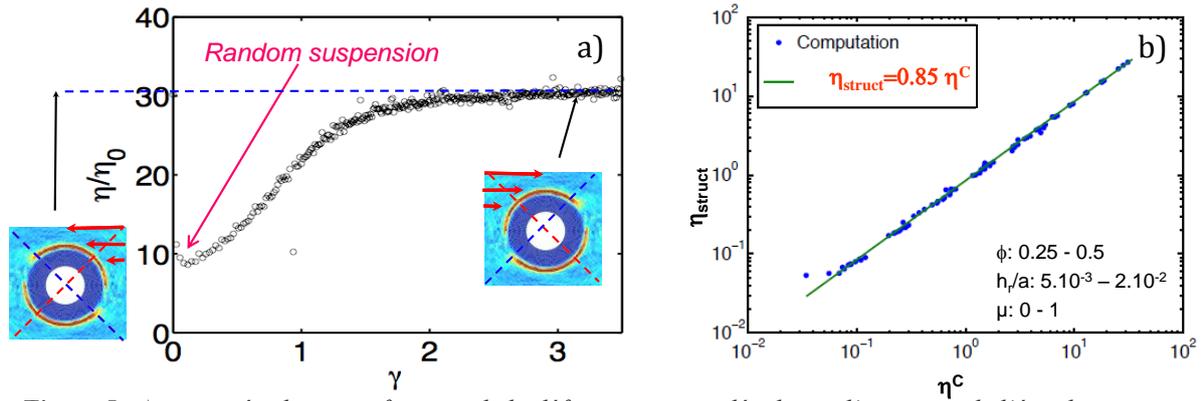


Figure 5. a) viscosité relative en fonction de la déformation cumulée depuis l'inversion de l'écoulement (expérience, $\phi=0.444$). b) Viscosité structurale (différence entre viscosité stationnaire et viscosité au minimum) en fonction de la part de la viscosité provenant des forces de contact (simulations numériques).

3.4 Rhéologie de suspensions de particules anguleuses.

Nous avons effectué une étude comparative de suspensions de sphères (particules de polystyrène de 80 μm de diamètre, TS 80, Microbeads) (figure 7(a)) d'une part et de suspensions de particules de sucre cristallisé (taille comprise entre 80 et 120 μm) (figure 7(b)) d'autre part. Les particules de sucre, comme de polystyrène sont dispersées dans de l'huile silicone de viscosité 1.03 Pa.s. Nous avons montré que les courbes d'écoulement des deux types de suspensions sont très différentes. En particulier les suspensions de particules de sucre manifestent une rhéofluidification beaucoup plus prononcée que les suspensions de particules sphériques (figure 6). Cependant, des expériences d'inversion du cisaillement, nous permettent de trouver un comportement identique pour ces deux types de suspensions quand la différence entre la viscosité stationnaire et la viscosité au minimum normalisée par la viscosité stationnaire est tracée en fonction de la fraction volumique divisée par la fraction de blocage [12], voir figure 7 :

$$\frac{\eta_s - \eta_{min}}{\eta_s} = f\left(\frac{\phi}{\phi_m}\right)$$

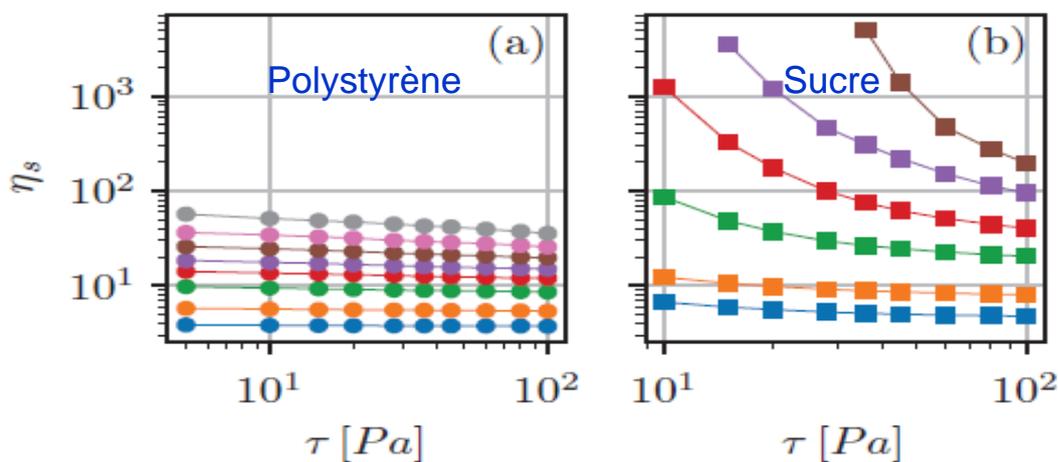


Figure 6. Courbes d'écoulement obtenues pour les suspensions à base de particules sphériques de polystyrène $\phi=0.3 - 0.51$ (a) et de particules de sucre $\phi=0.3 - 0.49$ (b). Les différentes couleurs correspondent aux différentes fractions volumiques.

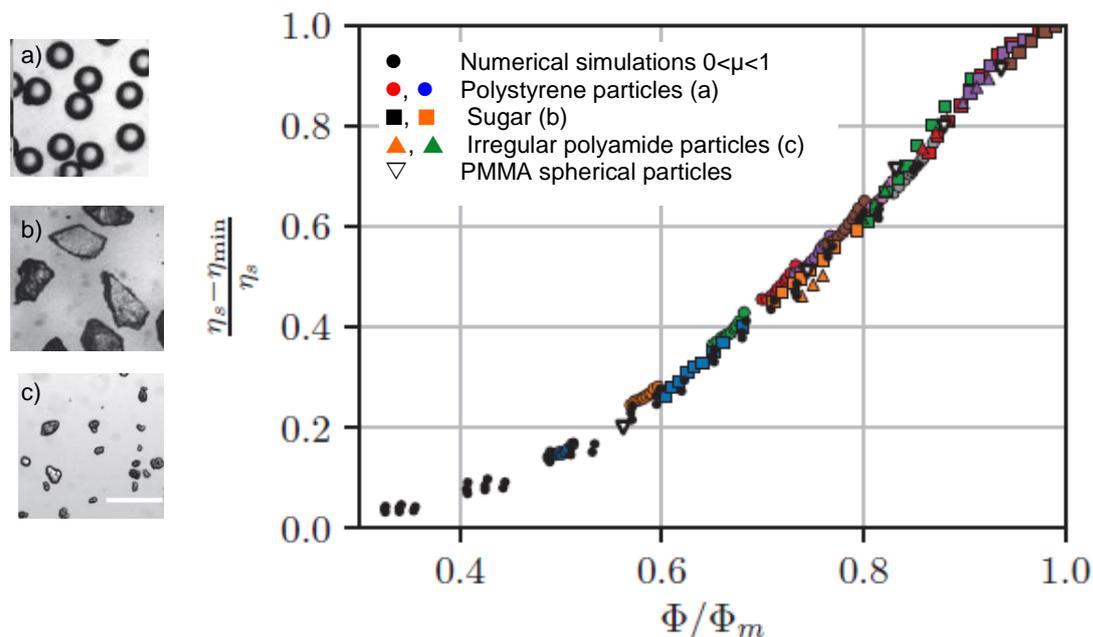


Figure 7. a) Particules sphériques de polystyrène. b) particules facettées de sucre. c) particules irrégulières de polyamide. d) Scaling universel : viscosité structurale normalisée par la viscosité stationnaire en fonction de la fraction volumique divisée par la fraction de blocage.

4 Conclusion

L'émergence d'une nouvelle vision des suspensions où les contacts entre particules ont une importance primordiale ouvre de nombreuses perspectives. Sur le plan fondamental, il s'agira par la suite, comme cela a déjà été initié par Chatté et al. [13] de comprendre et de caractériser finement la physique du contact intervenant entre les particules dans un écoulement et d'en étudier les conséquences sur les écoulements de suspensions. Au niveau des applications, la prise en compte de l'intervention des forces de contact devra sans doute donner lieu à la mise en place de nouvelles stratégies pour contrôler la rhéologie de matériaux industriels.

Références

- [1] Batchelor, G. K. (1970). The stress system in a suspension of force-free particles. *Journal of fluid mechanics*, 41(3), 545-570.
- [2] Brady, J. F., & Bossis, G. (1988). Stokesian dynamics. *Annual review of fluid mechanics*, 20(1), 111-157.
- [3] Yeo, K., & Maxey, M. R. (2010). Simulation of concentrated suspensions using the force-coupling method. *Journal of computational physics*, 229(6), 2401-2421.
- [4] Mari, R., Seto, R., Morris, J. F., & Denn, M. M. (2014). Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-Brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 58(6), 1693-1724.
- [5] Gallier, S., Lemaire, E., Peters, F., & Lobry, L. (2014). Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 757, 514-549.

- [6] Blanc, F., Peters, F., & Lemaire, E. (2011). Experimental signature of the pair trajectories of rough spheres in the shear-induced microstructure in noncolloidal suspensions. *Physical review letters*, 107(20), 208302.
- [7] Da Cunha, F. R., & Hinch, E. J. (1996). Shear-induced dispersion in a dilute suspension of rough spheres. *Journal of fluid mechanics*, 309, 211-223.
- [8] Pham, P., Metzger, B., & Butler, J. E. (2015). Particle dispersion in sheared suspensions: Crucial role of solid-solid contacts. *Physics of Fluids*, 27(5), 051701.
- [9] Lobry, L., Lemaire, E., Blanc, F., Gallier, S., & Peters, F. (2019). Shear thinning in non-Brownian suspensions explained by variable friction between particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 860, 682-710.
- [10] Blanc, F., Peters, F., & Lemaire, E. (2011). Local transient rheological behavior of concentrated suspensions. *Journal of Rheology*, 55(4), 835-854.
- [11] Peters, F., Ghigliotti, G., Gallier, S., Blanc, F., Lemaire, E., & Lobry, L. (2016). Rheology of non-Brownian suspensions of rough frictional particles under shear reversal: a numerical study. *Journal of Rheology*, 60(4), 715-732.
- [12] Blanc, F., D'Ambrosio, E., Lobry, L., Peters, F., & Lemaire, E. (2018). Universal scaling law in frictional non-Brownian suspensions. *Physical Review Fluids*, 3(11), 114303.
- [13] Chatté, G., Comtet, J., Niguès, A., Bocquet, L., Siria, A., Ducouret, G., ... & Colin, A. (2018). Shear thinning in non-Brownian suspensions. *Soft matter*, 14(6), 879-893.