



**HAL**  
open science

# Rhéologie en cisaillement et compression de dispersions aqueuses d'une argile modèle dans le régime concentré

Céline Martin, Albert Magnin, Frédéric Pignon

► **To cite this version:**

Céline Martin, Albert Magnin, Frédéric Pignon. Rhéologie en cisaillement et compression de dispersions aqueuses d'une argile modèle dans le régime concentré. CFM 2007 - 18ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2007, Grenoble, France. hal-03361785

**HAL Id: hal-03361785**

**<https://hal.science/hal-03361785>**

Submitted on 1 Oct 2021

**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.

## Rhéologie en cisaillement et compression de dispersions aqueuses d'une argile modèle dans le régime concentré

Céline Martin<sup>1,2</sup>, Albert Magnin<sup>2</sup> & Frédéric Pignon<sup>2</sup>

<sup>1</sup> LGP2, Domaine Universitaire, B.P. 65, 38402 Saint-Martin d'Hères Cédex – Institut National Polytechnique de Grenoble, CNRS UMR 5518.

<sup>2</sup> Laboratoire de Rhéologie, Domaine Universitaire, B.P. 53, 38041 Grenoble Cédex – Université Joseph Fourier Grenoble 1, Institut National Polytechnique de Grenoble, CNRS UMR 5520

*celine.martin@efpg.inpg.fr*

### Résumé :

*Cette étude a pour but d'appréhender le comportement rhéologique sous cisaillement et sous compression des dispersions d'argile concentrées par centrifugation. Cette technique induit un gradient de concentration et de pression au sein des dépôts permettant de déterminer les seuils de contrainte en compression en fonction de la fraction volumique des dispersions. Les propriétés rhéologiques en cisaillement ont, quant à elles, été mesurées à l'aide d'un scissomètre de petites dimensions partiellement immergé dans le dépôt de centrifugation afin de minimiser les effets de déstructuration des échantillons. La réponse des dispersions soumises à un gradient de cisaillement faible est suivie dans le temps. Ainsi, les contraintes de cisaillement, les modules de cisaillement et les déformations sous cisaillement ont été déterminés en fonction de la fraction volumique. Certaines propriétés mécaniques, telles que le coefficient de Poisson, le module de compression ou encore l'angle de frottement, ont aussi été déduites.*

### Abstract :

*This study tends to characterize the rheological behavior under shear and compressive flows of clay dispersions concentrated by centrifugation. Due to the centrifuge acceleration, the deposits show a gradient of concentration and pressure so as to determine the compressive yield stresses versus the volume fraction of the dispersions. Rheological properties under shear flow have been measured by a vane test with low diameter specially developed for such materials. The vane is partially introduced into the deposit in order to minimize the set-up destructure of the samples. The transient response of the dispersions has been recorded at fixed shear rate. Consequently, shear yield stresses, shear modulus and shear strain have been determined versus the volume fraction. Some mechanical properties, such as Poisson modulus, shear modulus and friction angle have been deduced.*

### Mots-clefs :

**Rhéologie ; Nanoparticules ; Concentré**

## 1 Introduction

Le comportement rhéologique sous cisaillement et sous compression de dispersions d'argile concentrées par centrifugation a été identifié au cours de cette étude. Nous avons choisi de travailler avec une argile modèle : la Laponite. Cette argile synthétique est composée de particules discotiques nanométriques rigides relativement monodisperses et anisotropes, de part leur forme mais aussi leur charge de surface. Dispersée en milieu aqueux, cette argile fait alors l'objet de nombreuses investigations dans des domaines de concentration se limitant aux régimes dilués et semi-dilués. Leur structure a été caractérisée au cours d'études précédentes

[Kroon *et al.* (1998), Levitz *et al.* (2000), Martin *et al.* (2002, 2006), Mourchid *et al.* (1998), Pignon *et al.* (1996,1997, 1998), Saunders *et al.* (1999)]. Elle est organisée selon une hiérarchie liée aux échelles de longueur. Aux très petites échelles, chaque particule est entourée par d'autres particules sans orientation préférentielle les unes par rapport aux autres. Elles forment des sous unités de quelques centaines de nanomètres. A des échelles de longueur légèrement plus grandes, ces sous unités se regroupent en micro-domaines dont les tailles sont de l'ordre de quelques micromètres. Ils sont denses et sont séparés par des vides qui ne contiennent pas de particules libres. A des échelles de longueur plus grandes, ces micro-domaines s'agrègent. L'arrangement de la structure devient fractal. Pour une fraction volumique de 1%, la dimension fractale de cette organisation est de l'ordre de 1, traduisant un arrangement linéaire des agrégats microniques.

En revanche, dans le régime concentré, i.e. pour des fractions volumiques supérieures à 3% environ, les travaux sont plus rares. Les dispersions ne peuvent plus être mises en œuvre par les techniques usuelles de mélange, mais par des techniques de consolidation mécaniques (centrifugation, filtration) ou chimiques (compression osmotique). Une étude précédente [Martin *et al.* (2006)] a permis de caractériser, d'une part l'organisation structurale des dispersions de Laponite concentrées et d'identifier, d'autre part les mécanismes de consolidation dans ces systèmes. Ainsi, les particules tendent à s'aligner perpendiculairement à l'axe de compression avec une distance interparticulaire évoluant selon l'inverse de la fraction volumique. La pression osmotique interne est alors engendrée par cette distance interparticulaire et évolue avec la fraction volumique selon une loi de puissance caractéristique des systèmes lamellaires.

Cette étude sera présentée comme suit : après avoir décrit les matériaux et les techniques expérimentales mises en jeu, nous présenterons les résultats obtenus sous écoulement de compression et de cisaillement à savoir les seuils de contrainte, les modules et les déformations ainsi que les propriétés mécaniques qui en découlent.

## 2 Techniques expérimentales

Le matériau étudié est une dispersion d'argile synthétique de type hectorite, la Laponite, de formule chimique  $(\text{Si}_8\text{Mg}_{5.45}\text{Li}_{0.4}\text{H}_4\text{O}_{24})\text{Na}_{0.7}$ . Elle est fabriquée par Laporte Industries sous le nom de Laponite XLG. Elle se compose de particules discoïques de taille nanométrique d'un diamètre  $2R = 30$  nm et d'une épaisseur  $H = 1$  nm [Avery *et al.* (1986)]. La masse volumique des particules est  $2.53 \text{ g.cm}^{-3}$  [Neumann *et al.* (1970)].

Les dispersions d'argile concentrées ont été obtenues en centrifugeant des dispersions initiales de fraction volumique 1%, à l'aide d'une centrifugeuse Centrikon T – 1080 de Kontron Instruments à godets pivotants. Dans la suite de cette étude, nous appellerons dépôts, les dispersions consolidées par centrifugation correspondant à la phase solide des tubes de centrifugation. Après consolidation, les dépôts ont été conservés dans les tubes de centrifugation et ont été analysés immédiatement après l'arrêt de la centrifugation, afin d'éviter un regonflement éventuel privilégié aux fractions volumiques les plus basses du domaine étudié. La centrifugation induit alors au sein des échantillons un gradient de fraction volumique  $\phi(s)$  et un gradient de pression  $\Pi(s)$  reliés par [Martin *et al.* (2006)] :

$$\Pi(s) = \int_0^s (\rho_a - \rho_e) g(s) \phi(s) ds \quad (\text{éq. 1})$$
 où  $s$  est la position dans le dépôt,  $\rho_a$  est la masse volumique des particules,  $\rho_e$  celle de l'eau et  $g(s)$  l'accélération.

Par ailleurs, les mesures des seuils de contrainte en cisaillement et des modules de cisaillement de ces dispersions concentrées ont été effectuées par scissométrie. Cette instrumentation a l'avantage de n'endommager que très faiblement les échantillons lors de l'enfoncement de la pale puisqu'ils ne sont pas écrasés. Cette technique est utilisée depuis longtemps en mécanique des sols, dans les milieux granulaires, les boues ou encore les mousses [Alderman *et al.* (1991), Sherwood *et al.* (1991)]. Elle est basée sur le principe de fonctionnement suivant : une pale constituée de deux ou plusieurs plaques rectangulaires croisées perpendiculairement est plongée dans une certaine hauteur d'échantillon. Après la mise en place de la pale dans l'échantillon, une faible vitesse de rotation ( $\Omega = 10^{-3} \text{ rad.s}^{-1}$  pour cette étude) est imposée afin de mettre en évidence la réponse en couple de l'échantillon en fonction du temps (FIG. 1). De cette évolution, deux grandeurs sont calculées.

(i) le seuil de contrainte ( $\sigma_0$ ) via le couple maximal ( $C_m$ ) :

$$\sigma_0 = \frac{2C_m}{\pi D_s^3 \left( \frac{H_s}{D_s} + \frac{1}{6} \right)} \quad (\text{éq. 2}) \quad \text{avec } D_s = 5 \text{ mm, le diamètre}$$

de la pale et  $H_s$  la hauteur immergée de dimension variable.

(ii) le module de cisaillement ( $G$ ) via la pente du domaine linéaire :

$$G = \frac{1}{4\pi\Omega H_s} \left( \frac{dC}{dt} \right) \left( \frac{1}{R_s^2} - \frac{1}{R_c^2} \right) \quad (\text{éq. 3}) \quad \text{où } R_c \text{ est le}$$

rayon du tube de centrifugation.

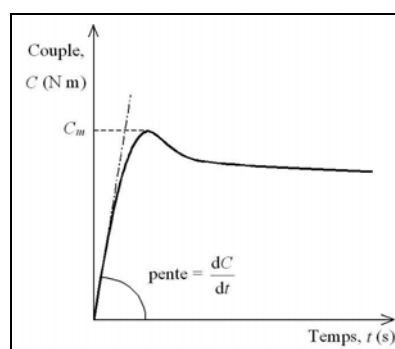


FIG. 1 – Evolution schématique du couple en fonction du temps.

### 3 Résultats

Le comportement rhéologique en cisaillement des dispersions de Laponite concentrées par centrifugation a été mis en évidence. Les seuils de contrainte, les modules ainsi que les déformations à la rupture ont été déterminés sur une gamme de fractions volumiques comprises entre 3,5% et 20%.

#### 3.1 Seuils de contrainte

L'évolution des seuils de contrainte en compression et des seuils de contrainte en cisaillement est représentée sur la figure ci-après (FIG. 2) en fonction de la fraction volumique des dispersions. Il apparaît alors que les seuils de contrainte en cisaillement suivent une évolution en loi de puissance en fonction de la fraction volumique des dispersions. L'exposant de cette loi varie selon deux régimes : pour des fractions volumiques inférieures à 10% environ, il est de l'ordre de 3 alors que pour des fractions volumiques supérieures à 10%, il est réduit à 1.5. Nos résultats dans le régime concentré sont dans le prolongement de ceux obtenus dans le régime semi-dilué par Pignon *et al.* (1996). Pour ces mesures de seuil, la pale du scissomètre était totalement immergée dans les échantillons.

Par ailleurs, les seuils de contrainte en compression ont des évolutions proches des seuils de contrainte en cisaillement sur la gamme de fractions volumiques étudiées. Ils sont plus élevés ce qui signifie que les dispersions ont une résistance au cisaillement moindre, du fait de leur structure. En effet, dans un écoulement de cisaillement, un nombre égal de liens de la structure est soumis à de la compression et de la traction, alors qu'en compression, une majorité de liens est comprimée. C'est pourquoi, les seuils sont plus élevés en compression qu'en cisaillement.

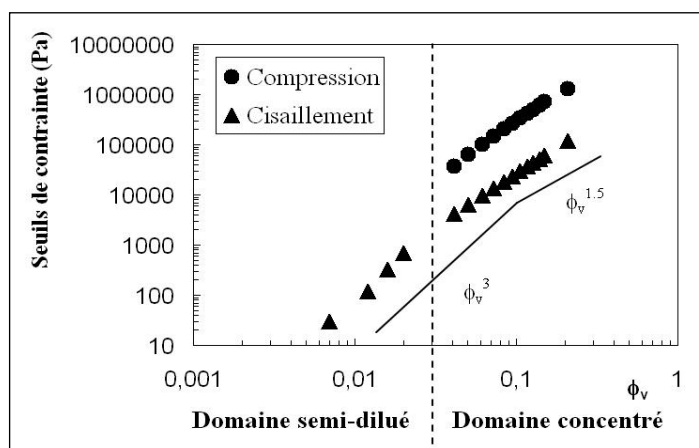


FIG. 2 – Seuils de contrainte en fonction de la fraction volumique des dispersions.

Une approche proposée par Chou *et al.* (1967) permet, sur la base théorique de l'élasticité linéaire, de déterminer le coefficient de Poisson ( $\nu$ ) du matériau considéré comme solide isotrope jusqu'au seuil, via :

$$\frac{\Pi}{\sigma_0} = \frac{2(1-\nu)}{1-2\nu} \quad (\text{éq. 4}).$$

Compte tenu des incertitudes de mesures, ce rapport apparaît relativement constant de l'ordre de 10 ce qui induit un coefficient de Poisson de 0.44, indiquant que le réseau de particules ne subit pas de variation de volume. Ce rapport peut aussi être interprété en terme d'angle de frottement interne ( $\varphi$ ) entre deux particules via la loi de Mohr-Coulomb :

$$\sigma_0 = c + \Pi \tan \varphi \quad (\text{éq. 5}) \text{ où } c \text{ est la cohésion du matériau.}$$

Dans notre étude, l'angle de frottement est évalué à  $3.36^\circ$ . Cette valeur est comparable à celle obtenue avec des argiles de Montmorillonite [Mitchell (1976)].

### 3.2 Modules de cisaillement et de compression

Les modules de cisaillement ( $G$ ) ont été calculés à partir de l'équation 3. Les modules de compression ( $K$ ) ont été évalués par la relation suivante proposée par Buscall (1982) :

$$K = \frac{d\Pi}{d \ln \phi_v} \quad (\text{éq. 6}).$$

Il apparaît (FIG. 3) que les modules en cisaillement et en compression suivent une évolution en loi de puissance similaire à celle des seuils de contrainte. Pour des fractions volumiques inférieures à 10% environ, la loi est proche d'une loi en  $\phi_v^3$ , alors que pour des fractions volumiques supérieures à 10%, l'évolution est ralentie et tend vers une loi proche de  $\phi_v^{1.5}$ . Par ailleurs, les modules en cisaillement sont supérieurs aux modules en compression.

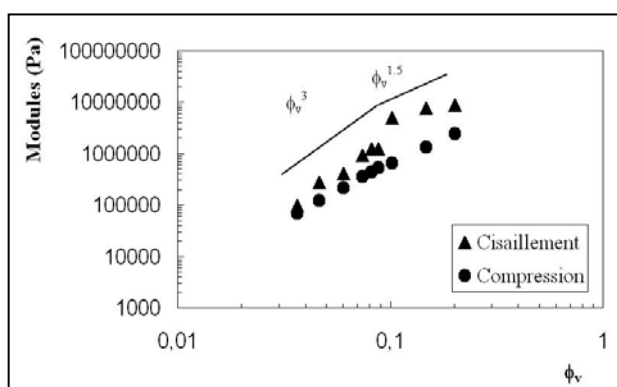


FIG. 3 – Modules en fonction de la fraction volumique des dispersions.

### 3.3 Déformations à la rupture en cisaillement

Les déformations à la rupture en cisaillement ont été évaluées par la relation suivante :

$$\gamma_c = \frac{\sigma_0}{G_s} \quad (\text{éq. 7}), \text{ où } G_s \text{ est le module de cisaillement au seuil. Notons que les modules}$$

précédemment calculés, à partir de la pente à l'origine du domaine de déformation élastique des dispersions, correspondent aux modules aux très petites déformations. Buscall *et al.* (1987) ont montré qu'il existe un rapport un tiers entre ces deux modules :  $G_s = G/3$ .

Ainsi, les déformations peuvent être représentées sur la figure ci-dessous (FIG. 4) en fonction de la fraction volumique des dispersions de Laponite concentrées. Sur ces courbes ont été ajoutées les déformations obtenues par Pignon *et al.* (1996) sur des dispersions semi-diluées soumises à un écoulement de cisaillement en géométrie cône/plan. Trois domaines principaux apparaissent :

- (i) Pour  $\phi_v \leq 3\%$ , les dispersions sont semi-diluées et présentent une structure fractale. Les résultats mettent en évidence des déformations importantes du réseau fractal sous cisaillement.
- (ii) Pour  $3\% \leq \phi_v \leq 10\%$ , les dispersions se concentrent. Les déformations diminuent. Ce sont les agrégats microniques qui se réarrangent sous cisaillement.
- (iii) Pour  $\phi_v \geq 10\%$ , les déformations deviennent moins sensibles à la concentration. Les agrégats se déforment sous cisaillement, entraînant un réarrangement et une orientation des particules entre elles.

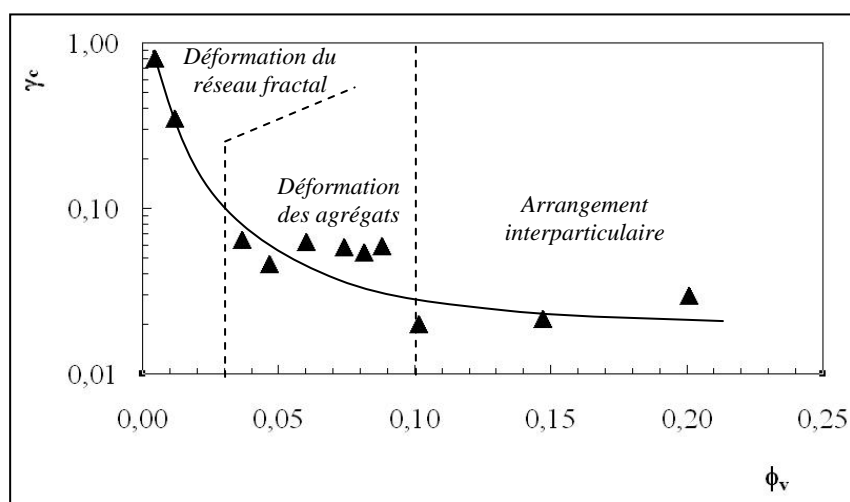


FIG. 4 – Déformation à la rupture en cisaillement en fonction de la fraction volumique des dispersions.

## 4 Conclusions

En conclusion, le comportement rhéologique sous compression et sous cisaillement de dispersions de Laponite concentrées par centrifugation a été identifié. Le domaine de concentration étudié, compris entre 3.5% et 20%, s'étend au-delà de la plupart des travaux bibliographiques effectués sur cette argile.

Les résultats obtenus montrent que les seuils de contrainte et les modules suivent une évolution en loi de puissance en fonction de la fraction volumique. Pour des fractions

volumiques supérieures à 10% environ, cette évolution est ralentie. En effet, les dispersions ont une structure de plus en plus anisotrope : les particules sont forcées de s'aligner entre elles. L'origine du seuil de contrainte provient alors essentiellement des forces de frottement entre les particules.

## Références

- Alderman, N.J., Meeten, G.H. & Sherwood, J.D. 1991 Vane rheometry of bentonite gels *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **39**, 291-310
- Avery, R.G. & Ramsay, J.D.F. 1986 Colloidal properties of synthetic hectorite clay dispersions *J. Colloid Interface Sci.* **109(2)**, 448-454
- Buscall, R. & White, L.R. 1987 The consolidation of concentrated suspensions. Part 1.- The theory of sedimentation *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 1* **83**, 873-891
- Buscall, R. 1982 The elastic properties of structured dispersions: a simple centrifuge method of examination *Colloids Surf.* **5**, 269-283
- Chou, P.C. & Pagano, N.J. 1967 Elasticity: Tensor, dyadic, and engineering approaches *Dover, New York*
- Kroon, M., Vos, W.L. & Wegdam, G.H. 1998 Structure and formation of a gel of colloidal disks *Phys. Rev. E* **57(2)**, 1962-1970.
- Levitz, P., Lecolier, E., Mourchid, A., Delville, A. & Lyonnard, S. 2000 Liquid-solid transition of Laponite suspensions at very low strength: Long-range electrostatic stabilisation of anisotropic colloids *Europhys. Lett.* **49(5)**, 672-677.
- Martin, C., Pignon, F., Magnin, A., Meireles, M., Lelièvre, V., Lindner, P. & Cabane, B. 2006 Osmotic compression and expansion of highly ordered clay dispersions *Langmuir* **22(9)**, 4065-4075
- Martin, C., Pignon, F., Magnin, A., Piau, J.M., Cabane, B. and Lindner, P. 2002 Dissociation of thixotropic clay gels *Phys. Rev. E* **66(2)**, 021401
- Mitchell, J.K. 1976 Fundamentals of soil behaviour *Wiley, New York*
- Mourchid, A., Lécolier, E., Van Damme, H. & Levitz, P. 1998 On viscoelastic, birefringent, and swelling properties of Laponite clay suspensions: Revisited phase diagram *Langmuir* **14(17)**, 4718-4723.
- Neumann, B.S. & Sansom, K.G. 1970 The formation of stable sols from Laponite, a synthetic hectorite-like clay *Clay Minerals* **8**, 389-404
- Pignon, F., Magnin, A. & Piau, J.M. 1996 Thixotropic colloidal suspension and flow curves with minimum: Identification of flow regimes and rheometric consequences *J. Rheology* **40(4)**, 573-587
- Pignon, F., Magnin, A. & Piau, J.M. 1997 Butterfly light scattering pattern and rheology of a sheared thixotropic clay gel *Phys. Rev. Lett.* **79(23)**, 4689-4692
- Pignon, F., Magnin, A. & Piau, J.M. 1998 Thixotropic behavior of clay dispersions: combinations of scattering and rheometric techniques *J. Rheology* **42(6)**, 1349-1373.
- Pignon, F., Magnin, A., Piau, J.M., Cabane, B., Lindner, P. & Diat, O. 1997 Yield stress thixotropic clay suspension: Investigations of structure by light, neutron and X-ray scattering *Phys. Rev. E* **56(3)**, 3281-3289
- Pignon, F., Piau, J.M. & Magnin, A. 1996 Structure and pertinent length scale of a discotic clay gel *Phys. Rev. Lett.* **76(25)**, 4857-4860
- Saunders, J.M., Goodwin, J.M., Richardson, R.M. & Vincent, B. 1999 A small-angle X-ray scattering study of the structure of aqueous Laponite dispersions *J. Phys. Chem. B* **103(43)**, 9211-9218.
- Sherwood, J.D. & Meeten, G.H. 1991 The use of the vane to measure the shear modulus of linear elastic solids *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **41**, 101-118