



**HAL**  
open science

# ETUDE DES SUSPENSIONS ELECTRORHEOLOGIQUES : ROLE DE LA CONDUCTION DES PHASES SOLIDE ET LIQUIDE DANS L'INTERACTION ENTRE LES PARTICULES

Christophe Boissy

► **To cite this version:**

Christophe Boissy. ETUDE DES SUSPENSIONS ELECTRORHEOLOGIQUES : ROLE DE LA CONDUCTION DES PHASES SOLIDE ET LIQUIDE DANS L'INTERACTION ENTRE LES PARTICULES . Physique [physics]. Université Joseph Fourier (Grenoble I), 1996. Français. NNT : . tel-01663014

**HAL Id: tel-01663014**

**<https://hal.science/tel-01663014v1>**

Submitted on 13 Dec 2017

**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.

THESE  
présentée par  
**Christophe Boissy**

Pour obtenir le titre de docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble 1  
(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 30 Mars 1992)

Spécialité : PHYSIQUE

**ETUDE DES SUSPENSIONS ELECTORRHEOLOGIQUES :  
ROLE DE LA CONDUCTION DES PHASES SOLIDE ET LIQUIDE  
DANS L'INTERACTION ENTRE LES PARTICULES**

Date de soutenance : 14 Mars 1996

Composition du jury :

Jean-Pierre Chabrierie : *Président*  
Georges Bossis : *Rapporteur*  
Antonio Castellanos : *Rapporteur*  
Pierre Atten  
Noëlle Berger  
Jean-Numa Foulc  
Gérard Touchard

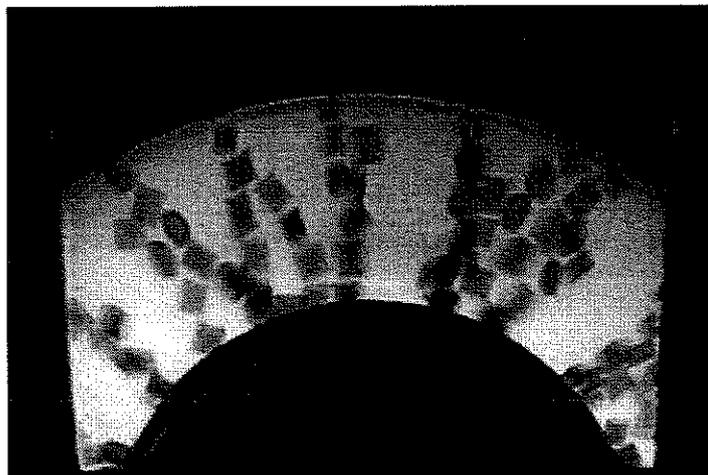
} *Examineurs*

Thèse préparée au sein du **Laboratoire d'Electrostatique et de Matériaux Diélectriques**  
C.N.R.S. associé à l'Université Joseph Fourier - Grenoble 1



**"Etude des suspensions électrorhéologiques :  
Rôle de la conduction des phases solide et liquide  
dans l'interaction entre les particules"**

*THESE PRESENTEE PAR CHRISTOPHE BOISSY*





## Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire d'Electrostatique et de Matériaux Diélectriques, je tiens à remercier Monsieur Jean-Pierre Gosse qui en tant que Directeur m'a accueilli dans son laboratoire. Je remercie également Monsieur Pierre Atten, Directeur de Recherche au CNRS, qui a dirigé mon travail et qui a répondu à mes interrogations quotidiennes en me faisant partager une petite partie de ses connaissances. Je remercie également Monsieur Jean-Numa Foulc, Maître de conférences à l'université Joseph Fourier de Grenoble, co-directeur de cette étude, pour son soutien et son aide quotidienne dans la réalisation pratique de ce travail. J'exprime également ma reconnaissance à Monsieur Le Professeur Noël Félici pour sa contribution à cette étude et pour les nombreuses discussions toujours enrichissantes que nous avons eues. Enfin je rends hommage au Professeur Eugène Geniès pour sa collaboration enthousiaste, et dont la disparition brutale nous a profondément attristé.

Je remercie vivement la Société Nationale Elf-Aquitaine qui a financé cette étude ainsi que Madame Noëlle Berger, également membre du jury, et Monsieur Michel Jaccoud, de la société Elf-Atochem, qui ont consacré du temps au suivi de mes travaux.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Monsieur Georges Bossis, Directeur de Recherche au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (Nice), ainsi qu'à Monsieur Antonio Castellanos, Professeur à l'Université de Séville, qui m'ont fait l'honneur de bien vouloir examiner ce travail. J'exprime également toute ma gratitude à Monsieur Jean-Pierre Chabrierie, Directeur de Recherche au CNRS et Directeur du Laboratoire de Génie Electrique de Paris, qui a présidé le jury. Je remercie Monsieur Gérard Touchard, Professeur à l'Université de Poitiers, pour avoir accepté d'être membre du jury.

Enfin j'exprime ma gratitude à l'ensemble du personnel du LEMD pour sa disponibilité.



# SOMMAIRE

<b>Introduction</b> .....	<b>3</b>
---------------------------	----------

## **Partie I**

<b>Introduction</b> .....	<b>7</b>
---------------------------	----------

<b>Chapitre I : Les fluides électrorhéologiques</b> .....	<b>9</b>
---	----------

I.1 Historique .....	9
----------------------	---

I.2 Fluides électrorhéologiques, fluides magnétorhéologiques, ferrofluides et effets électrovisqueux .....	10
--	----

I.2.1 Les fluides électrorhéologiques (ER) .....	10
--	----

I.2.2 Les fluides magnétorhéologiques et les ferrofluides .....	10
---	----

I.2.3 Les effets électrovisqueux .....	11
--	----

I.3 Approche des fluides ER .....	12
-----------------------------------	----

<b>Chapitre II : Interactions entre particules</b> .....	<b>15</b>
--	-----------

II.1 Nature des interactions entre particules dans une suspension .....	15
---	----

II.1.1 Interactions entre particules sans champ électrique .....	15
--	----

II.1.2 Interactions entre particules avec champ électrique .....	17
--	----

II.2 Modélisation de l'interaction entre particules dans un fluide ER .....	19
---	----

II.2.1 Interactions dues aux doubles couches .....	19
--	----

II.2.2 Interaction dues aux forces capillaires .....	20
--	----

II.2.3 Le modèle de polarisation .....	20
--	----

II.2.4 Le modèle de conduction .....	22
--------------------------------------	----

II.3 Les paramètres .....	22
---------------------------	----

II.3.1 Permittivités et conductivités .....	23
---	----

II.3.2 Le champ électrique E .....	25
------------------------------------	----

II.3.3 L'eau .....	26
--------------------	----

II.3.4 Les surfactants et les propriétés physico-chimiques des particules .....	27
---	----

II.3.5 La température .....	27
-----------------------------	----

II.3.6 La taille et la géométrie des particules.....	28
--	----

II.4 Conclusion .....	28
-----------------------	----

<b>Chapitre III : La structuration .....</b>	<b>31</b>
III.1 Structuration sous l'influence d'un champ électrique .....	31
III.2 Influence de la structure sur la contrainte seuil .....	33
III.3 Influence du cisaillement sur la structuration .....	37
III.3.1 Organisation des chaînes .....	37
III.3.2 Rupture des chaînes .....	38
III.4 Autres facteurs susceptibles d'influencer les caractéristiques des fluides ER .....	40
III.5 Effet de l'application simultanée d'un champ électrique et d'un champ magnétique .....	40
III.5 Conclusion .....	42
 <b>Chapitre IV : Les propriétés macroscopiques .....</b>	 <b>43</b>
IV.1 Rhéogrammes .....	43
IV.1.1 Généralités .....	43
IV.1.2 Représentation à l'aide du nombre de Mason .....	45
IV.2 Phénomènes de thixotropie dans les fluides ER .....	46
IV.3 Influence de la fraction volumique .....	49
IV.4 Influence de la taille et de la géométrie des particules .....	51
IV.4.1 Effet de la taille des particules .....	51
IV.4.2 Effet de la forme des particules .....	52
IV.4.3 Effet de la dispersion .....	53
IV.5 Propriétés viscoélastiques des fluides ER .....	53
IV.6 Caractéristiques électriques des fluides ER .....	56
IV.7 Contrainte de traction et de compression .....	57
IV.8 Conclusion .....	57
 <b>Chapitre V : Les matériaux .....</b>	 <b>59</b>
V.1 Les matériaux extrinsèques .....	60
V.2 Les matériaux intrinsèques .....	62
V.2.1 Les conducteurs ioniques .....	62
V.2.2 Les conducteurs électroniques .....	64
V.2.3 Les matériaux à polarisation "moléculaire" .....	64
V.3 Les matériaux multicouches .....	66
V.4 Les fluides ER à base de solutions homogènes .....	66
V.5 Les fluides ER commerciaux .....	67
V.6 Les fluides MR .....	68

<b>Chapitre VI : Les applications .....</b>	<b>69</b>
<b>Conclusion .....</b>	<b>73</b>

## Partie II

<b>Introduction .....</b>	<b>77</b>
<b>Chapitre I : Comportement de particules soumises à un champ électrique continu .....</b>	<b>79</b>
I.1 Généralités .....	79
I.1.1 Force entre surfaces chargées .....	79
I.1.2 Champ continu et champ alternatif .....	80
I.1.3 Polarisation d'une sphère dans un champ électrique .....	81
I.1.4 Comportement de deux sphères soumises à un champ électrique continu .....	83
I.2 Comportement des particules d'une suspension dans le cas où $\sigma_S < \sigma_L$ .....	84
I.3 Conductivité maximale des particules .....	88
I.4 Comportement d'une suspension en fonction de $\sigma_S$ .....	90
<b>Chapitre II : Les bases du modèle de conduction .....</b>	<b>95</b>
II.1 Estimation de la force entre deux demi-sphères .....	95
II.1.1 Cas des champs faibles .....	101
II.1.2 Cas des champs forts .....	102
II.2 Etude expérimentale .....	104
II.2.1 Reproductibilité des mesures .....	105
II.2.2 Etude du couple L2128/Huile silicone .....	109
II.2.3 Etude du couple L2128/Huile TF50 .....	113
II.2.4 Etude du couple L2128/Jarylec .....	113
II.2.5 Etude du couple L2128/Ugilec .....	119
II.2.6 Etude du couple L2124/47V50 .....	120
II.3 Discussion des résultats .....	125
II.4 Etude de fluides ER .....	131
II.5 Conclusion .....	134

<b>Chapitre III : Le modèle de conduction : rôle de la conduction volumique du liquide .....</b>	<b>137</b>
III.1 Rappel sur la conduction des liquides en champ élevé .....	137
III.1.1 Conduction volumique .....	138
III.1.2 Phénomène de saturation du courant .....	139
III.2 Modèle de conduction pour les champs élevés .....	141
III.2.1 Conductivité renforcée (cas A) .....	141
III.2.2 Saturation du courant (cas B) .....	142
III.3 Comparaison avec l'expérience .....	143
III.4 Variation de la force d'interaction entre sphères en fonction de la distance de séparation .....	156
III.4.1 Observations expérimentales .....	156
III.4.2 Extension du modèle de conduction au cas de sphères séparées d'une faible distance .....	160
 <b>Chapitre IV : Autres mécanismes de conduction du liquide .....</b>	<b>165</b>
IV.1 Phénomènes d'injection .....	165
IV.2 Décharges partielles dans la zone de contact .....	168
IV.3 Interaction sphère-électrode .....	171
 <b>Chapitre V : Estimation de la contrainte seuil statique .....</b>	<b>175</b>
V.1 Chaînes simples .....	179
V.2 Fibres multiples .....	180
V.3 Chaînes flexibles .....	181
V.4 Synthèse .....	182
 <b>Chapitre VI : Influence de la fréquence du champ électrique et cas d'une conductivité de surface .....</b>	<b>185</b>
VI.1 Influence de la fréquence .....	185
VI.2 Cas des matériaux multicouches .....	187
VI.2.1 Cas d'une couche superficielle conductrice .....	187
VI.2.2 Cas d'une couche superficielle isolante .....	189
 <b>Conclusions et perspectives .....</b>	<b>191</b>

# Références bibliographiques.....195

## Annexes

### **Annexe A : Notions de rhéologie.....209**

1 Cisaillement et contrainte de cisaillement.....	211
2 Déformation et vitesse de cisaillement.....	212
3 Rhéogrammes.....	212
4 La viscosité.....	213
5 La viscoélasticité.....	213
6 Les modes d'écoulement.....	214
7 Les rhéomètres.....	217
7.1 Les rhéomètres à cylindres rotatifs.....	217
7.2 Les rhéomètres dynamiques (ou oscillants).....	218

### **Annexe B : Dispositifs expérimentaux.....219**

A) Plate-forme de mesure électrorhéologique.....	221
B) Dispositifs de visualisation.....	225
C) Système de mesure de la force d'attraction entre demi-sphères.....	227
D) Mesure de la conductivité des poudres et des liquides.....	231



# **INTRODUCTION**



Le travail que nous présentons concerne l'étude des mécanismes de base de l'effet électrorhéologique (ER). Cet effet se traduit par une modification notable des propriétés rhéologiques de certaines suspensions (Fluides ER) sous l'action d'un champ électrique (augmentation de la viscosité, apparition d'une contrainte seuil). Lorsque le champ électrique est supprimé la suspension retrouve ses propriétés initiales; l'effet est totalement réversible.

Depuis sa découverte dans les années quarante l'effet ER suscite un grand intérêt. Les applications potentielles de ces fluides dont la viscosité peut varier fortement sont nombreuses (embrayages, amortisseurs, vannes, actionneurs, etc). Les dispositifs utilisant des fluides ER présentent des avantages certains par rapport aux dispositifs "classiques" réalisant les mêmes fonctions. Ils sont souvent plus simples à construire et à contrôler, ils sont rapides et consomment peu d'énergie.

Au-delà des aspects pratiques, les fluides ER présentent un réel intérêt scientifique à cause de la diversité des phénomènes physiques mis en jeu. L'étude de ces fluides permet notamment de passer de l'interaction élémentaire entre les particules, à leur structuration et enfin à leurs caractéristiques rhéologiques (viscosité, élasticité, etc.).

Toutefois, la nature de l'interaction entre les particules reste encore un des points fondamentaux qu'il est nécessaire d'examiner et de mieux comprendre (ceci conditionne en grande partie l'évolution future des fluides ER). Le modèle le plus couramment utilisé se base sur l'interaction dipolaire entre particules et prend uniquement en compte les permittivités des matériaux, ces derniers étant considérés comme des isolants parfaits. Si ce modèle est valable dans le cas de champs électriques alternatifs haute fréquence, il ne l'est plus pour les champs électriques continus ou alternatifs basse fréquence pour lesquels la prise en compte des conductivités des matériaux est indispensable. C'est dans cette voie que s'est développé notre travail.

Dans une première partie nous présentons une étude bibliographique détaillée concernant les différents aspects des fluides électrorhéologiques (historique, phénomènes physiques, matériaux, applications, etc).

La deuxième partie correspond plus précisément à notre travail et concerne l'étude expérimentale de l'interaction entre particules d'un fluide ER soumis à un champ électrique continu. Nous prenons en compte les conductivités des matériaux pour élaborer un nouveau modèle qui est vérifié sur une expérience à grande échelle constituée de deux demi-sphères de taille centimétrique.



# PARTIE I



# Introduction

Notre étude bibliographique se base essentiellement sur des publications antérieures à 1995 et s'appuie sur les actes des conférences internationales bi-annuelles sur les fluides électrorhéologiques [Carbondale (USA) 1991 - Feldkirch (Autriche) 1993 - Sheffield (Angleterre) 1995] ainsi que sur les actes de la conférence internationale du Washington, D.C. Meeting of American Chemical Society (Août - 1994) dont une session était consacrée à l'électrorhéologie.

Après un bref rappel concernant l'histoire, nous introduisons dans le chapitre I les fluides électrorhéologiques (ER) et magnétorhéologiques (MR) (équivalent des fluides électrorhéologiques avec un champ magnétique) et nous présentons l'effet électrorhéologique. La description de cet effet est ensuite abordée selon trois points de vue. D'un point de vue microscopique où l'accent est mis sur l'interaction entre les particules et sur les paramètres susceptibles de jouer un rôle à ce niveau (Chap. II). D'un point de vue "mésoscopique" où nous regardons comment ces particules se structurent sous l'effet du champ électrique et du cisaillement (Chap. III). Enfin d'un point de vue macroscopique pour lequel nous nous intéressons aux caractéristiques rhéologiques et électriques de ces fluides (Chap. IV). Le chapitre V est consacré aux différents types de matériaux utilisés actuellement pour l'élaboration des fluides électrorhéologiques et aux caractéristiques des fluides commercialisés. Nous terminons par une présentation des applications potentielles des fluides ER et MR et nous faisons état des nombreuses contraintes et exigences qu'ils doivent satisfaire (Chap. VI).

Un certain nombre de points ne sont pas abordés et nous donnons simplement quelques références : les écoulements de type Poiseuille des fluides électrorhéologiques, dans des sections circulaires, carrées etc. [Atkin *et al.*, 1991 - Thurston et Gaertner, 1991 - Tamura et Doi, 1992]; la réponse transitoire des fluides électrorhéologiques à des créneaux de champ électrique [Ginder et Ceccio, 1995]; l'étude de la permittivité des suspensions ER [Klass et Martinek, 1967.b - Uejima, 1972 - Block *et al.*, 1990 et 1992].

L'étude des fluides électrorhéologiques fait appel à des connaissances en rhéologie. L'annexe A résume les notions de base, terminologie, appareillage, etc.



# Chapitre I

## Les fluides électrorhéologiques

### I.1 Historique

Au début des années quarante, l'américain Willis Winslow réalisa une série d'expériences sur des suspensions de particules de taille micrométrique dispersées dans des huiles de faible viscosité. Il observa que l'application d'un champ électrique de l'ordre du kilovolt par millimètre provoquait la formation de fibres dans la direction du champ électrique formant ainsi un lien mécanique entre les électrodes. Conscient des applications potentielles de ces fluides, il déposa un premier brevet en 1947 suivi par quelques autres jusqu'en 1962. En 1949 il publia un article dans la revue "Journal of Applied Physics". Cet article, le premier à traiter explicitement de l'effet ER, fait de W. Winslow le précurseur, sinon l'inventeur de l'effet ER [Winslow, 1949].

Durant les années suivantes peu de travaux sur les fluides électrorhéologiques sont publiés. Il faut attendre la fin des années soixante et les deux articles de Klass et Martinek pour que l'effet électrorhéologique soit à nouveau évoqué et qu'une première tentative d'explication du phénomène soit proposée [Klass et Martinek, 1967.a et 1967.b].

Les années soixante-dix furent essentiellement dominées par les travaux des équipes russes avec cependant quelques contributions japonaises. Durant les années quatre-vingts, les premiers travaux d'équipes anglaises apparaissent. Stangroom participe à la création de "ER Fluid Developments Ltd.", société spécialisée dans le développement et la promotion des fluides électrorhéologiques. Une autre société se crée également en Angleterre : "Advanced Fluid System" (AFS). A partir de 1985 les universitaires et industriels américains se lancent à nouveau dans l'étude des fluides ER. C'est également à partir de 1985 que s'intensifie la publication de brevets. C'est aussi la période où d'importantes sociétés se lancent dans la recherche sur les fluides ER [Asahi Chemical Ind. Co., Bayer AG, Bridgestone Corp., Ford Motors Co., General Electric Co., General Motors, Lord Corp., Nippon Shokubai, etc.]

Il faut attendre le début des années quatre-vingt-dix pour que l'étude de l'effet électrorhéologique se développe dans d'autres pays et notamment en France. Depuis lors, le nombre d'équipes et de pays engagés dans ce domaine n'a cessé d'augmenter.

L'étude de ces fluides a donc connu plusieurs vagues d'intérêt. La raison principale des "mises en veille" successives de ces recherches est liée à la grande complexité du sujet due à la diversité des phénomènes physiques mis en jeu et au manque de connaissance des mécanismes de base de l'effet et par voie de conséquence à l'impossibilité de définir des matériaux conduisant à l'élaboration de fluides ER performants. Depuis 1985, les avancées concernant la compréhension de l'effet ER sont considérables et les progrès réalisés dans le domaine des matériaux (synthèse, caractérisation) et des systèmes de commande et d'asservissement ont relancé l'activité dans ce domaine. Les premiers fluides ER commercialisés sont apparus depuis peu. Pour l'instant ils ne sont pas encore suffisamment performants mais il est raisonnable d'espérer des progrès significatifs dans les prochaines années.

## **I.2 Fluides électrorhéologiques, fluides magnétorhéologiques, ferrofluides et effets électrovisqueux**

### **I.2.1 Les fluides électrorhéologiques (ER) :**

Les fluides ER sont généralement constitués de particules dispersées dans un liquide diélectrique. Les particules ont des tailles de l'ordre de quelques microns (1 - 100  $\mu\text{m}$ ) et leur fraction volumique est comprise entre 20 et 40 %. Il existe également, comme nous le verrons dans le chapitre V, des fluides à base de cristaux liquides qui présentent une augmentation de viscosité lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. L'effet ER est dû à la structuration des particules qui, sous l'effet du champ électrique, forment des fibres entre les électrodes. Cette structuration se traduit par une forte augmentation de la viscosité pouvant aller jusqu'à l'obtention d'une gélification du fluide si celui-ci n'est pas soumis à une contrainte de cisaillement trop importante. Ces fluides faisant l'objet de notre travail, nous les aborderons plus en détail par la suite.

### **I.2.2 Les fluides magnétorhéologiques et les ferrofluides :**

Il est possible d'obtenir un phénomène analogue à l'effet ER en utilisant des particules magnétiques et un champ magnétique. Ces fluides sont dits magnétorhéologiques (MR) et sont constitués de particules magnétiques de taille micrométrique (1-10  $\mu\text{m}$ ) dont la fraction volumique est du même ordre de grandeur que pour les fluides ER. Ils présentent eux aussi la particularité de se structurer sous l'effet d'un champ magnétique en formant des fibres

parallèlement à la direction du champ. Les particules sont constituées d'un matériau magnétique [Kordonsky *et al.*, 1994 - Kiyohito, 1996] ou d'une inclusion de grains magnétiques dans une matrice [Bossis *et al.*, 1990 - Fujita *et al.*, 1993 - Fermigier et Gast, 1993 - Liu *et al.*, 1994.a et 1994.b].

Les fluides MR se différencient des ferrofluides par la taille des particules. En effet les ferrofluides sont des suspensions colloïdales dont les particules ont une taille de quelques nanomètres (~ 10 nm). La faible taille des particules constituant les ferrofluides a pour avantage d'éviter toute sédimentation; les particules étant suffisamment agitées par le mouvement brownien. Ce mouvement limite également l'agglomération des particules sous l'effet du champ magnétique ainsi les ferrofluides restent liquides quel que soit le champ magnétique appliqué contrairement aux fluides MR qui se gélifient et présentent une contrainte seuil [Chantrell *et al.*, 1982, Rosensweig, 1985]. Il nous faut cependant remarquer qu'un ferrofluide concentré présente néanmoins une viscosité qui dépend fortement de l'intensité du champ magnétique [Bacri *et al.*, 1987].

Les effets électrorhéologiques et magnétorhéologiques peuvent être combinés simultanément grâce à l'utilisation de particules sensibles à la fois au champ magnétique et au champ électrique. Ces fluides sont appelés magnéto-électrorhéologiques (MER); nous en parlerons au paragraphe III.5.

### **I.2.3 Les effets électrovisqueux :**

L'effet ER a parfois été désigné comme "effet électrovisqueux", ce qui n'est pas exactement le cas. Il existe effectivement d'autres effets de nature électrostatique qui contribuent à augmenter la viscosité des suspensions. Ces effets électrovisqueux ne nécessitent pas l'application d'un champ électrique et sont donc à distinguer de l'effet ER [Jordan et Shaw, 1989 - Couarraze et Grossiord, 1991].

Ils se produisent lorsque les particules en suspension possèdent des charges électriques sur leur surface. Ces charges peuvent être intrinsèques à la particule ou résulter d'une affinité particulière entre la surface des particules et le liquide environnant (absorption, substitution, réaction chimique). Autour de la particule se créent alors des couches d'ions dont le signe est opposé à celui de la charge des particules. Une première couche d'épaisseur très faible liée à la particule et une deuxième couche formant un nuage de charges autour de la particule, appelée couche diffuse [Lyklema, 1984].

- Premier effet électrovisqueux : Lorsque les particules sont mises en mouvement dans le liquide, la répartition d'équilibre de la double couche autour de la particule est modifiée. Cette

modification induit des interactions électrostatiques entre la particule et la double couche qui se traduisent par une augmentation de la viscosité.

- Deuxième effet électrovisqueux : Les particules entourées de leur double couche, ayant toutes le même signe, se repoussent ce qui contribue à augmenter la viscosité lorsque la suspension est cisailée.

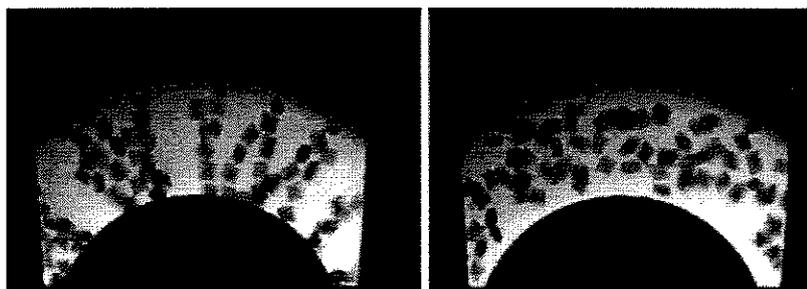
- Troisième effet électrovisqueux : Quand des macromolécules comportent des groupements ioniques les interactions entre ceux-ci modifient la configuration de la molécule. La viscosité de la suspension se trouve alors modifiée.

### I.3 Approche des fluides ER

Comme nous l'avons vu précédemment, l'effet ER est lié à la structuration des particules sous l'effet d'un champ électrique. Les particules forment des fibres entre les électrodes, et la suspension se transforme en gel capable de supporter une certaine contrainte avant de s'écouler (Fig. I.I.1.a et I.I.2.a). Sans champ électrique nous sommes en présence d'une suspension fluide dans laquelle les particules sont dispersées aléatoirement (Fig. I.I.1.b et I.I.2.b).



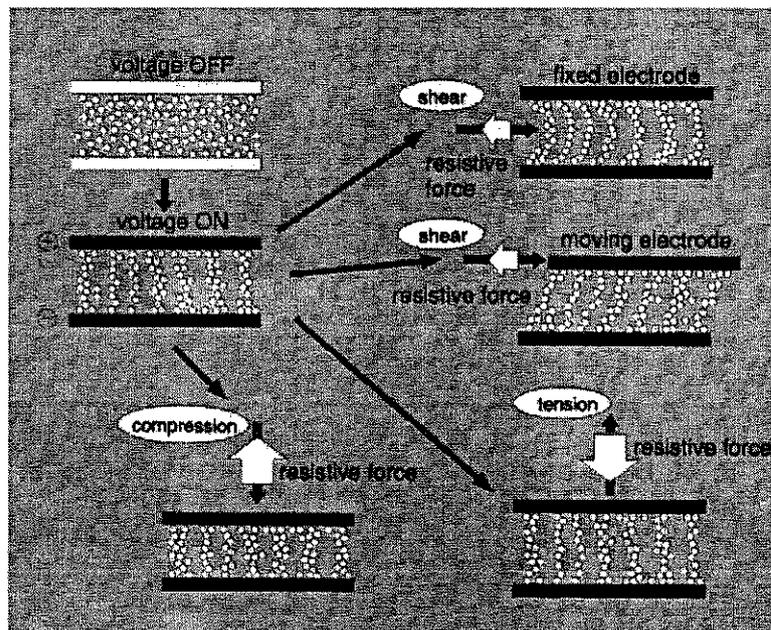
**Figure I.I.1** : Cellulose dans de l'huile minérale : [a] avec champ; [b] sans champ.



**Figure I.I.2** : Grains de polyamide dans de l'huile minérale : [a] avec champ; [b] sans champ.

L'effet ER peut se manifester sous différents régimes de contrainte (Fig. I.I.3) :

- Cisaillement en écoulement de Poiseuille : Les fibres formées s'opposent à l'écoulement du fluide et provoquent une forte augmentation de la viscosité apparente. Si la différence de pression est suffisamment faible on peut obtenir un arrêt total de l'écoulement.
- Cisaillement en écoulement de Couette : On observe deux cas. Premièrement la contrainte de cisaillement est suffisamment faible pour ne pas rompre les fibres, le fluide transmet dans ce cas la contrainte d'une électrode à l'autre. Au-delà de la contrainte seuil correspondant à la rupture des fibres, le fluide s'écoule et l'interaction entre particules ou amas de particules provoque une forte augmentation de la viscosité.
- Traction ou compression : La contrainte seuil de traction (ou de compression) est supérieure à la contrainte seuil de cisaillement. Le glissement des particules les unes par rapport aux autres à l'intérieur des fibres nécessite une certaine énergie qui se traduit par une résistance à la traction. En compression on observe le même mécanisme. Notons que ces modes de travail (traction/compression) sont peu utilisés dans la pratique.



**Figure I.I.3** : Modes de travail des fluides ER (plaquette publicitaire Bridgestone).

Il apparaît que pour caractériser les propriétés des fluides électrorhéologiques (viscosité, contrainte seuil, etc.) il est nécessaire de connaître la façon dont se structurent les particules et donc de connaître les lois d'interaction entre ces particules. Les fluides ER peuvent être abordé suivant trois points de vue :

- L'interaction entre particules : Il s'agit ici de définir quelles sont les lois et les grandeurs qui déterminent l'interaction entre les particules (permittivité, conductivité, taille, forme, état de surface des particules, etc.) et d'obtenir une modélisation de cette interaction.
- La structuration : Ceci concerne les différents modes de formation et de rupture des chaînes de particules. Forment-elles des fibres composées d'une seule chaîne ou de plusieurs? Existe-t-il une structure privilégiée? Quel est le temps de réponse? Comment se comportent les chaînes sous l'effet d'un cisaillement? Quelle est l'influence de la fraction volumique? etc.
- Les propriétés macroscopiques : Le fluide est considéré dans sa globalité et il s'agit de définir quelles sont ses caractéristiques rhéologiques (viscosité, contrainte seuil, etc.). Sont-ils rhéofluidifiants, rhéoépaississants, plastiques? Quelle est l'influence de la structure? Sont-ils thixotropes? etc.

Ce sont ces trois aspects que nous allons développer dans les chapitres suivants.

# Chapitre II

## Interactions entre particules

### II.1 Nature des interactions entre particules dans une suspension

L'étude du comportement rhéologique des suspensions est un domaine vaste et complexe en raison notamment de la diversité des types de suspensions et du grand nombre d'interactions possibles entre les particules. Dans le cas des fluides ER, la présence d'un champ électrique intense et la taille des particules viennent en quelque sorte "simplifier" le problème de l'interaction permettant de dégager deux interactions dominantes.

#### II.1.1 Interactions entre particules sans champ électrique :

Si les particules de la suspension sont petites, les interactions avec les molécules du fluide deviennent non négligeables. Ces interactions browniennes sont d'autant plus importantes que la température est élevée. Elles confèrent aux particules un mouvement de diffusion dont le coefficient est [Petit, 1991] :

$$D = \frac{kT}{6\pi\eta a}$$

où  $\eta$  est la viscosité dynamique du liquide et  $a$  le rayon des particules.

Les particules sont également soumises à la force de gravité. Cette force a tendance à provoquer la sédimentation des particules lorsque celles-ci sont plus denses que le liquide (ce qui est fréquemment le cas en électrorhéologie). Si les particules sont suffisamment petites (suspensions colloïdales) l'agitation thermique est suffisante pour éviter cette sédimentation. Néanmoins dans le cas des fluides ER la taille des particules est trop importante et cela

implique que leur densité doit être la plus proche possible de celle du liquide. Cette condition est une des principales difficultés rencontrées avec les fluides ER.

Les particules subissent également des interactions électrostatiques. Elles peuvent être de deux sortes [Gast et Zukoski, 1989 - Petit, 1991] :

- *Interactions de Van der Waals* : ce sont des interactions attractives de type dipolaire qui s'exercent entre deux particules proches. Ces interactions peuvent être exprimées par la relation :

$$F_{attrac} = -\frac{Aa}{12h^2}$$

où  $A$  est la constante de Hamaker,  $h$  la distance entre la surface des deux particules et  $a$  le rayon des particules.

- *Interactions électrostatiques répulsives* : Elles sont liées au phénomène de double couche. Lorsque les particules sont proches, les doubles couches s'interpénètrent et se repoussent. On peut obtenir un ordre de grandeur à l'aide de l'expression :

$$F_{rep} = \varepsilon \psi_0^2 \cdot \frac{\kappa a}{e^{\kappa h}}$$

où  $\kappa$  est la longueur de Debye (épaisseur de la double couche),  $\psi_0$  est le potentiel de la surface des particules et  $\varepsilon$  la permittivité du milieu.

Lorsque la suspension est soumise à un cisaillement  $\dot{\gamma}$  les particules subissent des forces hydrodynamiques. L'ordre de grandeur de ces forces est donné par :

$$F = 6\pi\eta a^2\dot{\gamma}$$

Remarquons qu'il peut également exister des forces de répulsion stérique dues à la présence de molécules solides sur la surface des particules. Ces répulsions stériques maintiennent les particules écartées les unes des autres et contribuent à la stabilité des suspensions (en particulier pour les suspensions colloïdales). D'autre part on ne tient pas compte de l'interaction "thermodynamique" due au gradient de concentration des particules dans la suspension; les suspensions sont considérées comme homogènes.

La comparaison de l'influence du mouvement brownien et de la force hydrodynamique conduit à un nombre sans dimension, le nombre de Peclet [Gast et Zukoski, 1989 - Petit, 1991 - Blanc, 1984] :

$$P_e = \frac{6\pi\eta a^3 \dot{\gamma}}{kT}$$

Pour un gradient de cisaillement  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$  et pour des particules de  $1 \text{ }\mu\text{m}$  dispersées dans de l'eau, le nombre de Peclet est de l'ordre de l'unité à température ambiante. En électrorhéologie  $\dot{\gamma}$  est souvent plus grand que  $1 \text{ s}^{-1}$ , les particules ont des tailles supérieures à  $1 \text{ }\mu\text{m}$  et les liquides sont plus visqueux que l'eau. Dans ces conditions la présence d'un cisaillement rend tout-à-fait négligeable l'effet du mouvement brownien.

L'influence des forces électrostatiques est plus délicate à estimer. Ces forces sont importantes quand les particules sont proches mais sont de signes contraires et peuvent donc se compenser. De plus, lorsque les particules s'approchent très près l'une de l'autre, il apparaît une force de résistance hydrodynamique entre les particules due à l'écoulement du film de liquide situé entre elles. Cet écoulement de lubrification empêche les particules de se rapprocher spontanément [Petit, 1991]. Les forces électrostatiques restent de l'ordre de quelques  $kT$  et varient ensuite en fonction du rayon alors que les interactions hydrodynamiques varient en fonction du carré du rayon [Gast et Zukoski, 1989]. L'ordre de grandeur du rapport de ces forces et des forces hydrodynamiques dans le cas des fluides ER est donc identique à celui du mouvement brownien.

Nous pouvons donc conclure que pour les fluides ER (taille des particules supérieure au micron), le mouvement des particules est gouverné en l'absence d'un champ électrique par les interactions hydrodynamiques.

### **II.1.2 Interactions entre particules avec champ électrique :**

L'application d'un champ électrique provoque la polarisation des particules. Elles subissent alors des interactions électrostatiques qui entraînent la formation des chaînes entre les électrodes (nous n'abordons pas ici les problèmes d'électrophorèse ou de diélectrophorèse qui ne provoquent pas la formation de fibres, ils seront abordés dans la deuxième partie, chapitre I). En l'absence de cisaillement, l'interaction électrostatique qui tend à rapprocher les particules va être en compétition avec le mouvement brownien qui va tendre à les disperser. En présence de cisaillement, comme nous venons de le voir, les forces hydrodynamiques vont

être dominantes par rapport au mouvement brownien. Il y aura donc compétition entre les forces électrostatiques et les forces hydrodynamiques.

- *Sans cisaillement* :

Considérons  $\lambda$  le paramètre sans dimension caractérisant l'importance relative de l'interaction de polarisation et de l'énergie thermique [Adriani et Gast, 1988 - Gast et Zukoski, 1989 - Halsey et Toor, 1990 - Xu et Hass, 1993]. Le terme dominant de l'énergie d'interaction entre deux dipôles ponctuels s'écrit :

$$W = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_f} \left( \frac{\bar{m}_1 \cdot \bar{m}_2}{a^3} - 3 \frac{(\bar{m}_1 \cdot \bar{a})(\bar{m}_2 \cdot \bar{a})}{a^5} \right)$$

où  $\bar{m} = 4\pi\epsilon_0\epsilon_f\beta a^3 E$  est le moment dipolaire,  $\beta = \frac{(\epsilon_p - \epsilon_f)}{(\epsilon_p + 2\epsilon_f)}$  et  $\epsilon_p, \epsilon_f$  sont les permittivités relatives de la particule et du liquide. Nous pouvons écrire :

$$\lambda = \frac{W}{kT} = \frac{\pi\epsilon_0\epsilon_f a^3 \beta^2 E^2}{kT}$$

Pour des valeurs de  $E = 2$  kV/mm,  $a = 1$   $\mu\text{m}$ ,  $\epsilon_f = 2$  et  $\epsilon_p = 10$  à température ambiante ( $T = 300$  °K) on a  $\lambda \sim 10^5$  [Gast et Zukoski, 1989].

Il semble donc que lorsqu'un champ électrique est appliqué l'énergie électrostatique est beaucoup plus importante que l'agitation thermique. De plus, dans les suspensions concentrées l'interaction électrostatique entre particules est plus grande à cause des interactions mutuelles [Adriani et Gast, 1988 - Gast et Zukoski, 1989 - Klingenberg *et al.*, 1991.b - Xu et Hass, 1993].

- *Avec cisaillement* :

Nous avons vu que les interactions électrostatiques et hydrodynamiques dominaient les autres types d'interactions rencontrées dans un fluide ER. Lorsque les particules sont soumises à la fois à un cisaillement et à un champ électrique il y a compétition entre les deux types d'interactions. Il faut donc dans ce cas définir un nombre sans dimension estimant l'importance relative des deux phénomènes, c'est le nombre de Mason donné par :

$$Mn = \frac{6\pi\eta a^2 \dot{\gamma}}{12\pi\epsilon_0\epsilon_f a^2 (\beta E)^2} = \frac{\eta \dot{\gamma}}{2\epsilon_0\epsilon_f (\beta E)^2}$$

Pour des valeurs de  $E = 2 \text{ kV/mm}$ ,  $\epsilon_f = 2$ ,  $\epsilon_p = 10$ ,  $\eta = 0,1 \text{ Pa.s}$  et  $\dot{\gamma} = 200 \text{ s}^{-1}$  :  $Mn = 1$  [Gast et Zukoski, 1989]. Donc pour des  $\dot{\gamma}$  plus petit et/ou un champ  $E$  plus grand,  $Mn < 1$  et inversement, pour  $\dot{\gamma}$  plus grand et/ou un champ  $E$  plus petit,  $Mn > 1$ . Le comportement des particules sera donc gouverné principalement soit par les interactions hydrodynamiques soit par les interactions électrostatiques suivant les valeurs du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et du champ électrique  $E$ .

On notera que le nombre de Mason défini précédemment fait intervenir une expression "classique" de l'interaction électrostatique (proportionnelle au carré du champ). Nous verrons par la suite que l'interaction n'est pas toujours proportionnelle à  $E^2$  et il est donc possible de rencontrer des expressions du nombre de Mason légèrement différentes de celle qui vient d'être donnée [Foulc *et al.*, 1996].

## **II.2 Modélisation de l'interaction entre particules dans un fluide ER**

Depuis sa "découverte" par Winslow, plusieurs tentatives d'explication de l'effet électrorhéologique ont été proposées : interaction des doubles couches entourant les particules, forces capillaires dues à la présence d'eau (pour les particules hydratées!), attraction dipolaire résultant de la polarisation des particules et enfin le modèle de conduction développé par notre équipe au LEMD.

### **II.2.1 Interactions dues aux doubles couches :**

La première explication concernant la nature de l'interaction entre particules dans un fluide ER est l'oeuvre de Klass et Martinek [Klass et Martinek, 1967.a]. Ces derniers estiment que la formation de chaînes ne peut pas être à l'origine de l'effet ER car leur temps de formation est bien supérieur au temps de réponse des fluides ER. Plus précisément, ils considèrent que sous l'effet du champ électrique les doubles couches entourant les particules se déforment et s'interpénètrent provoquant ainsi une force de répulsion entre particules. Le déplacement des particules dû à l'écoulement nécessite donc une énergie extérieure plus importante. Cet effet est à rapprocher du deuxième effet électrovisqueux, si ce n'est qu'il y a un champ électrique. Notons que dans leur article Klass et Martinek parlent de "fluide électrovisqueux" et non de fluide électrorhéologique.

Cette explication ne semble pas plausible pour deux raisons. Tout d'abord, on peut noter que toutes les expériences réalisées sur des fluides ER mettent en évidence la formation

de chaînes. En tout état de cause il semble que le recouvrement des doubles couches soit insuffisant pour expliquer la très forte augmentation de viscosité des fluides ER. D'autre part, il est fort probable que les doubles couches soient détruites lors de l'application du champ électrique. En effet l'ordre de grandeur du champ électrique dans la double couche est de  $0,1 \text{ V}/\mu\text{m}$  (potentiel zéta  $\cong 100 \text{ mV}$  et épaisseur de la couche de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$  pour les liquides isolants) alors que les champs rencontrés en électrorhéologie sont au moins de quelques  $\text{V}/\mu\text{m}$ . Ce modèle ne semble donc pas être à même de décrire les mécanismes intervenant dans l'effet ER.

### **II.2.2 Interactions dues aux forces capillaires :**

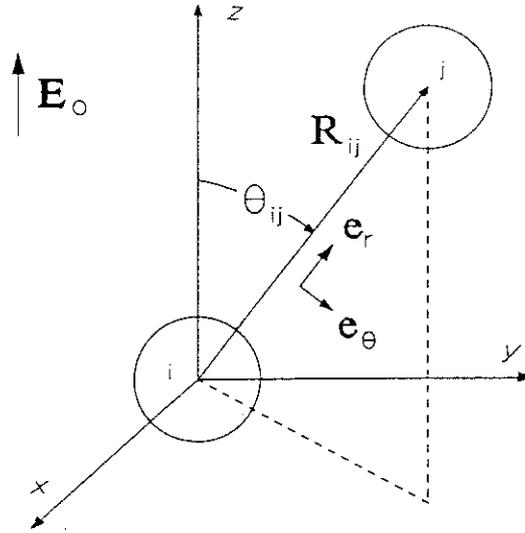
Le fait que la plupart des fluides ER étudiés avant les années 1980 contenaient de l'eau, et que la teneur en eau avait un rôle déterminant sur l'effet ER, a conduit Stangroom à présenter une explication de l'interaction basée sur la formation de "ponts" d'eau entre les particules [Stangroom, 1983]. Il considère que l'eau répartie à la surface des particules se déplace vers les zones de contact sous l'effet du champ électrique et forme des ponts entre les particules. Les forces capillaires résultantes seraient alors responsables de l'effet ER. Cette idée a été également reprise par une autre équipe qui considère le cas de particules poreuses [See *et al.*, 1993 - Tamura *et al.*, 1993].

Si on ne peut écarter totalement l'hypothèse que la formation de "ponts" d'eau entre les particules contribue à augmenter l'effet ER, l'existence de fluides performants ne nécessitant pas la présence d'eau implique que ce mécanisme n'est pas essentiel dans l'effet ER.

### **II.2.3 Le modèle de polarisation :**

Si on ne sait pas exactement décrire l'interaction entre particules en contact, il paraît néanmoins établi que c'est la polarisation des particules qui provoque la formation des chaînes. Il semble également que seule l'amplitude de la polarisation intervient et non le fait qu'elle soit due à une polarisation dans le volume des particules (polarisation moléculaire) ou à la constitution de couches de charge superficielles (polarisation interfaciale), ni même le fait qu'elle soit de type électronique ou ionique [Xu et Liang, 1991 - Block *et al.*, 1992]. Il est donc nécessaire de se pencher sur l'interaction entre deux sphères polarisables.

Considérons deux sphères isolées de permittivité  $\epsilon_p$  immergées dans un liquide de permittivité  $\epsilon_f$  et soumises à un champ électrique  $E$  (Fig. I.II.1).



**Figure I.II.1** : Représentation schématique de deux sphères soumises à un champ E. D'après Klingenberg *et al.*, 1989.

Une expression de la force d'interaction des deux sphères est donnée par [Gast et Zukoski, 1989 - Klingenberg *et al.*, 1991.a] :

$$F(r, \theta) = F_0 \cdot \left(\frac{a}{r}\right)^4 \cdot \left\{ [2f_{||}(r) \cos^2 \theta - f_{\perp}(r) \sin^2 \theta] \bar{e}_r + f_r(r) \sin(2\theta) \bar{e}_{\theta} \right\}$$

avec :  $F_0 = 12\pi\epsilon_0\epsilon_f a^2 \beta^2 E^2$

Les coefficients  $f_{||}(r)$ ,  $f_{\perp}(r)$  et  $f_r(r)$  sont des fonctions sans dimension dont les valeurs dépendent du rapport des permittivités  $\alpha = \epsilon_p/\epsilon_f$ , elles approchent l'unité quand  $r \rightarrow \infty$  (limite du dipôle ponctuel : *point-dipole limit*) ou quand  $\alpha \rightarrow 1$  [Klingenberg, 1988 - Klingenberg *et al.*, 1991.b]. Cette relation représentera dans la suite du document le "modèle de polarisation".

Ce modèle permet de décrire la structuration des fluides ER sous forme de chaînes et d'estimer le temps de réponse des fluides ER [Tao, 1991 - Hill *et al.*, 1992].

Il présente malheureusement plusieurs limitations. Premièrement il considère que les deux sphères sont isolées et néglige donc les effets d'interactions mutuelles. Si on les prend en compte, l'interaction dipolaire est augmentée (*multibody interactions*) [Adriani et Gast, 1988 - Gast et Zukoski, 1989 - Klingenberg *et al.*, 1991.b - Xu et Hass, 1993]. Deuxièmement il ne tient pas compte de la conductivité des constituants. Si les particules sont parfaitement conductrices ( $\alpha \rightarrow \infty$ ) la fonction  $f_{||}(r)$  diverge quand  $r \rightarrow 2a$  (c'est-à-dire lorsque les particules sont en contact). Il est donc difficile d'utiliser ce modèle pour des valeurs de  $\alpha > 10$  lorsque les particules sont proches [Bossis *et al.*, 1992]. Une solution consiste à introduire une force de répulsion à courte portée qui maintient les sphères séparées. Le résultat obtenu est

très sensible à la forme de l'expression choisie pour cette force de répulsion [Klingenberg *et al.*, 1991.b]. Notons également que l'interaction devrait être proportionnelle à  $\epsilon_f \cdot \beta^2$  et saturer pour des valeurs de  $\alpha > 60$  (si  $\epsilon_f$  est constant  $\beta \rightarrow 1$ ). Cette saturation n'est pas vérifiée expérimentalement ce qui démontre que ce modèle ne traduit pas correctement l'interaction entre les particules d'un fluide ER [Garino *et al.*, 1992]. Enfin, le modèle prédit pour la variation de la force une loi quadratique en fonction du champ appliqué qui elle non plus n'est pas toujours vérifiée expérimentalement. Il existe d'autres méthodes de calcul, toujours basées sur les interactions entre multipôles, permettant d'estimer l'interaction électrostatique entre les particules. Ces méthodes s'affranchissent de certaines limitations rencontrées avec le modèle que nous venons de décrire. Néanmoins leur développement étant souvent complexe et ne faisant pas l'objet de notre approche nous ne les aborderons pas.

#### **II.2.4 Le modèle de conduction :**

Nous venons de voir que le modèle de polarisation ne prend pas en compte la conductivité. Or, les matériaux utilisés ont souvent une conductivité que l'on ne peut pas négliger. De plus, lorsque les champs électriques sont continus ce sont les propriétés de conduction qui déterminent la distribution des charges et donc l'intensité de l'interaction.

Bien que certains auteurs aient souligné l'existence d'une relation entre la conductivité et l'effet ER [Klass et Martinek, 1967.b - Evans *et al.*, 1992 - Matsepuro et Kordonsky, 1992] et que d'autres aient avancé l'idée qu'elle jouait probablement un rôle dans l'effet ER [Block et Kelly, 1988 - Block *et al.*, 1990], le problème n'a été que très peu abordé avant 1992 [Anderson, 1992 - Davis, 1992.a]. Un premier modèle de l'interaction entre deux particules sous l'effet d'un champ électrique continu, prenant en compte les conductivités de la phase solide et de la phase liquide, a été présenté par Foulc *et al.* [Foulc *et al.*, 1992]. Le développement de ce modèle faisant l'objet de notre travail nous en parlerons plus amplement dans la deuxième partie. Récemment la démarche utilisée dans l'élaboration du modèle de conduction a été reprise par l'équipe de Conrad [Tang *et al.*, 1995.a et 1995.b].

### **II.3 Les paramètres**

Depuis sa découverte, et malgré les nombreux travaux réalisés depuis lors, l'effet ER n'a pas encore reçu d'explication satisfaisante. Une des raisons de cette relative ignorance est liée au nombre important de paramètres intervenant dans cet effet. Dans un certain nombre de travaux, les informations concernant les conditions expérimentales sont incomplètes et les

paramètres ne sont pas toujours maîtrisés. On comprend donc qu'il soit parfois difficile de tirer profit des nombreuses expériences réalisées, les résultats apparaissant même dans certains cas contradictoires. Depuis la fin des années 1980 les choses ont beaucoup évolué, les progrès et la diversité des techniques expérimentales, l'aspect beaucoup plus spécifique des mesures, la meilleure détermination des caractéristiques des matériaux utilisés ont très nettement contribué à identifier les différents paramètres et à clarifier leur influence sur l'effet ER.

### **II.3.1 Permittivités et conductivités :**

Nous avons vu au paragraphe II.2 que deux modèles sont proposés pour expliquer l'interaction électrostatique entre les particules d'un fluide ER. Le modèle de polarisation qui considère les permittivités des matériaux et suppose qu'ils sont parfaitement isolants; le modèle de conduction qui considère que ce sont les conductivités des différents constituants qui déterminent l'interaction entre les particules.

Dans le cas du modèle de conduction il faut supposer que le champ électrique est stationnaire, c'est-à-dire que ses variations sont très lentes par rapport au temps de relaxation des charges électriques. Ceci est réalisé quand le champ appliqué est continu ou a une fréquence faible. Dans le cas du modèle de polarisation on suppose que la conductivité des matériaux n'intervient pas. Il faut donc que les variations du champ électrique soient beaucoup plus rapides que le temps de relaxation des charges. Il existe donc une fréquence de coupure  $f_c$  correspondant à la transition entre le régime dominé par les conductivités et le régime dominé par les permittivités [Anderson, 1992 - Garino *et al.*, 1992 - Whittle *et al.*, 1994]. Cette fréquence dépend bien évidemment de la nature des phénomènes. Pour une polarisation interfaciale (due à la migration de charges à la surface des particules ou dans leur volume) elle dépend de la conductivité et de la permittivité des matériaux et peut varier de quelques fractions d'Hertz à quelques kHz.

Au voisinage de  $f_c$  les permittivités et les conductivités doivent être prises en compte.

Le moment dipolaire d'une sphère isolée de permittivité  $\epsilon_p$  plongée dans un milieu de permittivité  $\epsilon_f$  et soumise à un champ  $E$  alternatif s'écrit [Purcell, 1973] :

$$p = 4\pi\epsilon_0\epsilon_f a^3 \beta E$$

avec

$$\beta = \frac{(\epsilon_p - \epsilon_f)}{(\epsilon_p + 2\epsilon_f)}$$

Dans le cas des champs continus, le moment dipolaire d'une sphère de conductivité  $\sigma_p$  dans un milieu de conductivité  $\sigma_f$  s'écrit :

$$p = 4\pi\epsilon_0\epsilon_f a^3 \beta' E$$

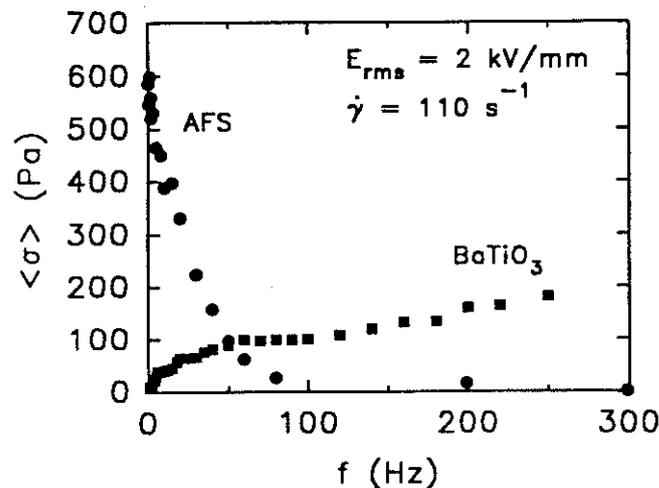
avec

$$\beta' = \frac{(\sigma_p - \sigma_f)}{(\sigma_p + 2\sigma_f)}$$

Pour avoir une interaction notable il faut une valeur du coefficient  $\beta$  importante, on a donc intérêt à avoir un rapport  $\epsilon_p/\epsilon_f \gg 1$ . L'analogie entre les deux expressions de la polarisation a permis à Davis d'avancer qu'il fallait, dans le cas où les conductivités étaient dominantes un rapport  $\sigma_p/\sigma_f \gg 1$  [Davis, 1992.a].

La similitude des relations précédentes a conduit certains auteurs à utiliser le modèle de polarisation en exprimant  $\beta$  en fonction des conductivités [Davis, 1993 - See *et al.*, 1996]. Si cela peut donner de bons résultats quand les sphères sont éloignées, il faut ensuite tenir compte du passage du courant lorsqu'elles sont en contact et le modèle de polarisation devient dans ce cas difficilement applicable.

Il est donc possible de schématiser le principe de fonctionnement des fluides ER de la façon suivante : en champ continu c'est le rapport des conductivités  $\sigma_p/\sigma_f$  qui est le paramètre fixant l'intensité de l'interaction; en champ alternatif, pour une fréquence suffisante, c'est le rapport des permittivités  $\epsilon_p/\epsilon_f$  qui est déterminant. Il est donc possible, suivant la valeur relative de  $\epsilon_p/\epsilon_f$  et de  $\sigma_p/\sigma_f$  d'avoir un effet ER croissant ou décroissant lorsque la fréquence augmente. A titre d'exemple sont représentées sur la figure I.II.2 les variations de la contrainte en fonction de la fréquence pour un fluide à base de particules hydratées et fonctionnant pour un champ continu (rapport  $\sigma_p/\sigma_f$  important) et un fluide à base de céramique isolante (rapport  $\epsilon_p/\epsilon_f$  important).



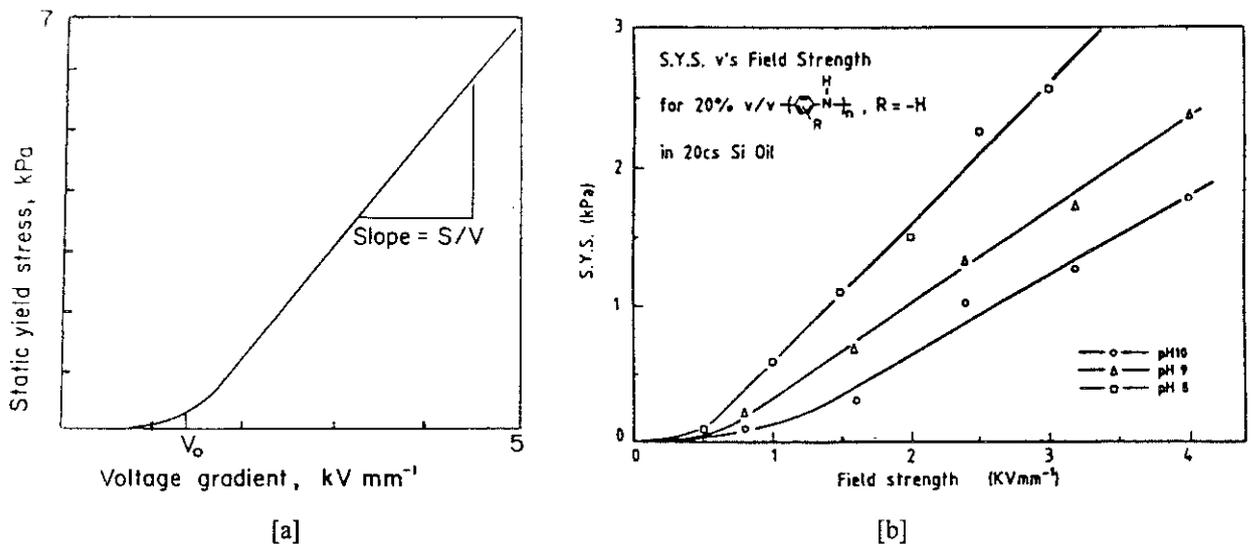
**Figure I.II.2 :** Variation de la contrainte en fonction de la fréquence du champ électrique pour deux fluides de caractéristiques différentes. Fluide AFS ( $\sigma_p/\sigma_f \gg 1$ ) et fluide BaTiO<sub>3</sub> ( $\epsilon_p/\epsilon_f \gg 1$ ). D'après : Ginder et Ceccio, 1994.

Nous venons de voir que l'effet de la fréquence du champ électrique était lié aux mécanismes impliqués dans l'effet ER. La plupart des matériaux rencontrés présentent un effet ER marqué soit à basses fréquences soit à hautes fréquences. Dans certains cas l'effet ER est maximal pour des fréquences comprises entre 5 et 80 Hz [Randall *et al.*, 1994 - Kim et Klingenberg, 1994.a].

### II.3.2 Le champ électrique E :

A travers le rôle de la permittivité et de la conductivité nous venons d'explorer l'influence de la fréquence du champ électrique. Nous abordons maintenant l'effet de l'amplitude du champ. Deux questions se posent : premièrement l'effet ER nécessite-t-il un champ minimum pour se manifester ? Deuxièmement, comment varie l'intensité de la force avec le champ électrique ?

Il semble qu'il faille retenir l'hypothèse de l'existence d'un champ seuil à partir duquel l'effet ER se manifeste notablement (Fig. I.II.3). Comme nous le verrons dans le chapitre III, le champ seuil est lié à l'apparition des chaînes de particules entre les électrodes [Jordan et Shaw, 1989 - Gow et Zukoski, 1990 - Blackwood *et al.*, 1994.b].



**Figure I.II.3** : Variation de la contrainte seuil en fonction du champ E. D'après : [a] Stangroom, 1983 [b] Blackwood *et al.*, 1994.b.

Le modèle de polarisation prévoit pour l'interaction entre les particules une variation suivant  $E^2$  alors que le modèle de conduction présenté en détail dans la deuxième partie, prévoit une variation entre  $E^2$  et  $E$  suivant l'intensité du champ. Le passage de l'interaction

entre deux sphères à la contrainte que peut transmettre un ensemble de particules constituant les fibres des fluides ER n'est pas immédiat et constitue comme nous le verrons une des difficultés de l'étude des fluides ER. La contrainte observée expérimentalement a des variations comprises entre  $E^{2.5}$  et  $E$  [Jordan et Shaw, 1989 - Klingenberg *et al.*, 1991.b].

### **II.3.3 L'eau :**

La présence d'eau dans la phase solide a longtemps été considérée comme indispensable pour obtenir l'effet ER, du moins jusqu'à la fin des années 1980 et l'apparition de nouveaux matériaux produisant un effet ER sans sa présence. Néanmoins, le rôle exact qu'elle jouait n'était pas clairement établi, sa présence paraissait nécessaire car déshydratés les matériaux ne produisaient pas d'effet ER [Filisko et Radzilowski, 1990 - Otsubo *et al.*, 1992.a], mais un taux d'humidité trop élevé entraînait une diminution de l'effet. D'une manière générale on observe que l'effet ER augmente avec le taux d'humidité, passe par un maximum, puis décroît [Uejima, 1972 - Sugimoto, 1977 - Deinega et Vinogradov, 1984 - Kordonsky *et al.*, 1991 - Matsepuro et Kordonsky, 1992 - Chen et Conrad, 1993]. D'autre part, la présence d'eau pose des problèmes de stabilité (évaporation), de corrosion et de plus elle augmente la conductivité de la suspension, entraînant une augmentation de consommation d'énergie et un échauffement du fluide.

En fait l'eau joue le rôle de promoteur de l'effet ER. Elle est absorbée à la surface des particules et en raison de son fort pouvoir dissociant, elle augmente fortement la dissociation des paires d'ions ainsi que leur mobilité. Elle favorise ainsi la polarisation interfaciale et la conductivité des particules. Elle peut également être absorbée à l'intérieur des particules si celles-ci sont poreuses, les charges se déplaçant alors dans le volume des particules [Stangroom, 1991]. Il semble également que seule la partie "libre" des molécules d'eau joue un rôle et que la partie beaucoup plus liée à la particule (eau structurale) ne participe pas à l'effet ER [Stipanovic et Schoonmaker, 1994 - Kawai *et al.*, 1996]

Le fait qu'une quantité d'eau importante provoque une diminution de l'effet ER est souvent expliqué par l'affaiblissement du champ électrique entre les particules. Nous proposerons dans la deuxième partie une autre explication basée sur le temps de transfert de charges entre particules et son influence sur la formation des chaînes.

### **II.3.4 Les surfactants et les propriétés physico-chimiques des particules :**

La présence de charges mobiles, en surface ou en volume, susceptibles de créer une polarisation n'est pas uniquement l'apanage de l'eau. Les charges peuvent provenir des surfactants ou directement de la particule.

- *Les surfactants* : Leur rôle est comparable à celui de l'eau : apport de charges nécessaires pour que l'effet ER se manifeste et/ou augmentation de la dissociation des paires d'ions présentes dans les particules [Block et Kelly, 1988 - Weiss *et al.*, 1994]. On observe effectivement, comme dans le cas de l'eau, le passage de l'effet ER par un maximum suivant la concentration en surfactant [Kim et Klingenberg, 1994.a].

- *La nature des particules* : Les matériaux nécessitant une certaine quantité d'eau ou de surfactants sont dits "extrinsèques". Depuis quelques années sont apparus des matériaux ne nécessitant aucun additif, ils sont dits "intrinsèques". Certains de ces matériaux contiennent des ions, dans leur volume ou liés à leur surface, capables de se déplacer et de provoquer la polarisation des particules. D'autres matériaux possèdent une conduction électronique qui provoque également une polarisation. Les principaux matériaux rencontrés en électrorhéologie seront décrits plus amplement dans le chapitre V.

Comme nous l'avons dit, seul le taux de polarisation semble important, sa nature (ionique, électronique) intervenant uniquement au niveau des temps de relaxation. D'une certaine façon la nature de la particule n'a que très peu d'influence et ses propriétés de surface, ou les modifications qui lui sont apportées, peuvent suffire à promouvoir ou renforcer l'effet ER qui dépend étroitement des propriétés physico-chimiques des particules et des additifs [Sugimoto, 1977 - Treasurer *et al.*, 1991].

### **II.3.5 La température :**

La dépendance de l'effet ER avec la température présente un intérêt fondamental et également pratique en raison de l'échauffement des fluides dans les systèmes mécaniques dû à la dissipation d'énergie (visqueuse et électrique).

Si on regarde l'évolution de l'effet ER avec la température pour les fluides contenant de l'eau, on observe qualitativement le même comportement que celui obtenu pour différents taux d'humidité. C'est-à-dire une augmentation de l'effet puis une diminution [Deinaga et Vinogradov, 1984]. Il est probable que l'accroissement de la température facilite dans un premier temps la polarisation des particules (renforcement de la dissociation d'ions et

augmentation de leur mobilité). Puis, comme pour l'augmentation du taux d'humidité, la conductivité devient relativement importante et l'effet diminue. D'autre part, au-delà de 100°C l'eau a tendance à s'évaporer et il n'est plus possible d'obtenir un effet ER significatif.

Pour les matériaux intrinsèques, la température a également un effet positif dû à un probable accroissement du nombre et de la mobilité des porteurs de charge [Treasurer *et al.*, 1991 - Xu et Liang, 1991]. C'est ainsi qu'il y a un bon accord entre la conduction de certaines particules et la diffusion des ions dans ces particules [Conrad *et al.*, 1991]. Ces fluides présentent surtout l'avantage de pouvoir fonctionner à des températures supérieures à celles des matériaux extrinsèques car il n'y a plus de problème d'évaporation de l'agent promoteur [Kuramoto *et al.*, 1994].

### **II.3.6 La taille et la géométrie des particules :**

Peu de travaux ont été réalisés sur ce point. On peut simplement remarquer que l'effet ER semble plus important lorsque la taille des particules est plus élevée ou lorsqu'elles ont une forme allongée.

S'il est probable que la forme et la taille modifient la polarisation des particules [Mokeyev *et al.*, 1992 - Kanu et Shaw, 1996], il est également fort possible qu'elles aient une influence sur la structuration des particules (point que nous aborderons dans le chapitre III). Notons enfin que l'état de surface des particules détermine la qualité de leur contact et qu'il peut donc également jouer un rôle important.

## **II.4 Conclusion**

Les fluides ER sont des suspensions de particules qui en l'absence de champ électrique et de cisaillement sont aléatoirement dispersées. L'application d'un champ électrique provoque la formation entre les électrodes de fibres stables; ces fibres sont à l'origine de l'effet ER. Si nous appliquons un cisaillement il y a alors compétition entre les forces hydrodynamiques visant à briser les chaînes et les forces d'interaction électrostatique visant à les maintenir. La connaissance de l'interaction entre les particules et des paramètres qui la déterminent est un des points importants à clarifier pour pouvoir développer des fluides ER performants. Deux modèles sont actuellement proposés : le modèle de polarisation, prenant en compte les permittivités des matériaux et applicable pour des champs électriques à fréquence élevée, et le modèle de conduction que nous développerons dans la deuxième partie, prenant en compte les conductivités, et applicable pour les champs continus ou basses fréquences.

Le mécanisme fondamental de l'effet ER est lié au phénomène de polarisation et de transport de charges localisées en surface ou à l'intérieur des particules. Les matériaux pour lesquels l'effet n'apparaît qu'à fréquence relativement élevée doivent certainement posséder uniquement une polarisation à l'échelle moléculaire mais le plus souvent les suspensions présentent une contrainte seuil importante en champ continu et plus faible en champ alternatif pour des fréquences élevées. Ceci est le signe d'une polarisation interfaciale due à des processus physico-chimiques difficiles à modéliser, et même à caractériser, mais dont le rôle est essentiel dans l'effet ER.



# Chapitre III

## La structuration

Nous abordons maintenant l'étude du comportement des fluides ER au moment où les particules sont polarisées et où elles commencent à se rapprocher pour former des chaînes entre les électrodes. Plusieurs questions se posent : quel est le temps nécessaire à la formation des chaînes ? La structure est-elle formée de chaînes séparées ou bien est-ce que les chaînes forment des agrégats plus épais ? Qu'elle est l'influence de la structure sur la contrainte seuil ? Quel est l'effet du cisaillement sur la structure ? Comment se brisent les chaînes ? etc...

### III.1 Structuration sous l'influence d'un champ électrique

Comme nous l'avons évoqué au paragraphe précédent il semble qu'un champ minimal soit nécessaire pour assurer la formation des chaînes et produire un effet électrorhéologique notable. Tao prévoit que ce champ est de l'ordre de 1 kV/mm [Tao *et al.*, 1989]. Dans des travaux plus récents il distingue deux champs critiques notés :  $E_1$  et  $E_2$ . Pour des champs  $E < E_1$  la suspension reste liquide, pour  $E_1 < E < E_2$  il y a formation de chaînes et pour  $E > E_2$  les chaînes s'attirent et forment des agrégats plus épais [Tao, 1993]. Tang *et al.* ont expérimenté ce point et sont arrivés à la même conclusion [Tang *et al.*, 1994]. Tao trouve pour  $E_1$  et  $E_2$  respectivement 420 et 650 V/mm et Tang *et al.* obtiennent expérimentalement 1400 et 1850 V/mm. Nous pouvons donc retenir que le champ électrique à partir duquel un effet ER notable apparaît est de l'ordre du kV/mm.

Halsey et ses collaborateurs prévoient un phénomène d'agrégation en deux temps : premièrement la formation rapide de chaînes ( $< \text{ms}$ ); deuxièmement la formation au bout de plusieurs dizaines de secondes d'agrégats plus épais. Dans le cas où la longueur de l'agrégat  $L$  est très supérieure au rayon des particules  $a$ , le rayon  $r$  des agrégats est donné par [Halsey et Toor, 1990 - Martin *et al.*, 1992] :

$$r \propto a \left( \frac{L}{a} \right)^{\frac{2}{3}}$$

Grasselli *et al.* trouvent expérimentalement ce type de variation avec des suspensions magnétiques pour des rapports  $L/a$  compris entre 190 et 900 et une fraction volumique de 10% [Grasselli *et al.*, 1994].

Klingenberg *et al.* déterminent à l'aide d'une simulation que le temps de formation des chaînes est de l'ordre de quelques millisecondes et ils relèvent expérimentalement un temps inférieur à 10 ms [Klingenberg *et al.*, 1989]. Des temps de formation des chaînes entre deux électrodes, voisins de la milliseconde sont obtenus expérimentalement [Hill et Steenkiste, 1991 - Tanaka *et al.*, 1992]. Weiss et Carlson réalisent des expériences sur des systèmes utilisant des fluides ER et trouvent un temps de réponse global compris entre 10 et 30 ms [Weiss et Carlson, 1992].

Les chaînes formées rapidement évoluent ensuite vers des agrégats de plusieurs chaînes soit, comme le prévoit Tao, sous l'influence du champ électrique soit, comme le suggère Halsey, à cause d'une migration "naturelle" sous l'influence des fluctuations thermiques. See et Doi trouvent une taille moyenne des agrégats dépendant de la fraction volumique  $\phi$  et du temps  $t$  :

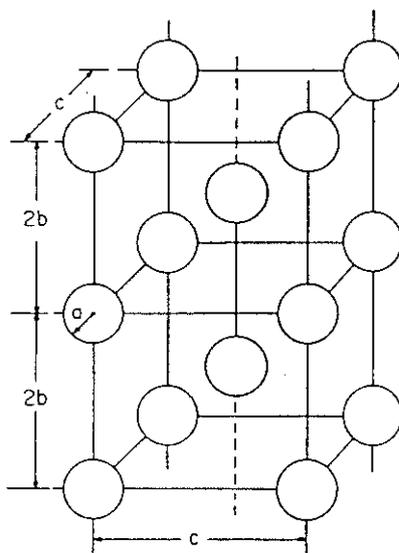
$$r \propto (\phi t)^{0,5}$$

et affirment obtenir un bon accord avec l'expérience [See et Doi, 1991]. Dans une étude plus récente Klingenberg *et al.* avancent que la vitesse d'évolution de la taille des agrégats dépend également de la fraction volumique, ce qui semble a priori normal [Klingenberg *et al.*, 1993].

Il est évident que la fraction volumique va jouer un rôle sur le temps de réponse des fluides ER et l'agrégation des chaînes. Le fait que les suspensions concentrées ( $\phi > 20\%$ ) soient très opaques rend les observations expérimentales difficiles. Il est cependant certain que les temps mesurés sur des suspensions de faible concentration représentent des bornes supérieures du temps de réponse de l'effet ER.

Il est important de connaître la structure selon laquelle les chaînes se regroupent. Tao et Sun ont théoriquement montré que si le rapport de la distance entre les électrodes et le rayon des particules est inférieur à 12 les chaînes restent séparées, dans le cas contraire il se forme une structure tétragonale centrée (*Body-centered tetragonal* : *bct*) représentée sur la figure I.III.1 [Tao et Sun, 1991]. Cette structure a été observée expérimentalement par Chen *et al.* [Chen *et al.*, 1992]. La prédiction de Tao et Sun supposait des valeurs de  $\alpha = \epsilon_p/\epsilon_f$  faibles et se basait sur l'approximation d'une interaction dipôle-dipôle. Davis réalisa le même type de calcul pour des valeurs de  $\alpha \gg 1$  et Friedberg et Yu, en tenant compte des multipôles d'ordres supérieurs, arrivent également à la conclusion que la structure *bct* est la plus favorable [Davis, 1992.b, Friedberg et Yu, 1992]. Bossis *et al.* aboutissent aussi à cette conclusion en effectuant une simulation à l'aide d'un modèle multipolaire, pour des valeurs de  $\alpha$  variant de 1 à 100 [Bossis *et al.*, 1994.b]. Récemment, Tao et Jiang ont réalisé une simulation dynamique en 3D,

ne prenant en compte que les interactions dipolaires, qui confirme aussi la structure bct [Tao et Jiang, 1994]. Dans la plupart des cas rencontrés en électrorhéologie la taille des particules et les distances entre électrodes étant telles que  $L/a > 12$ , la structure bct est vraisemblablement celle suivant laquelle les chaînes de particules s'organisent dans les fluides ER.



**Figure I.III.1** : Représentation d'une structure tétragonale centrée : bct.

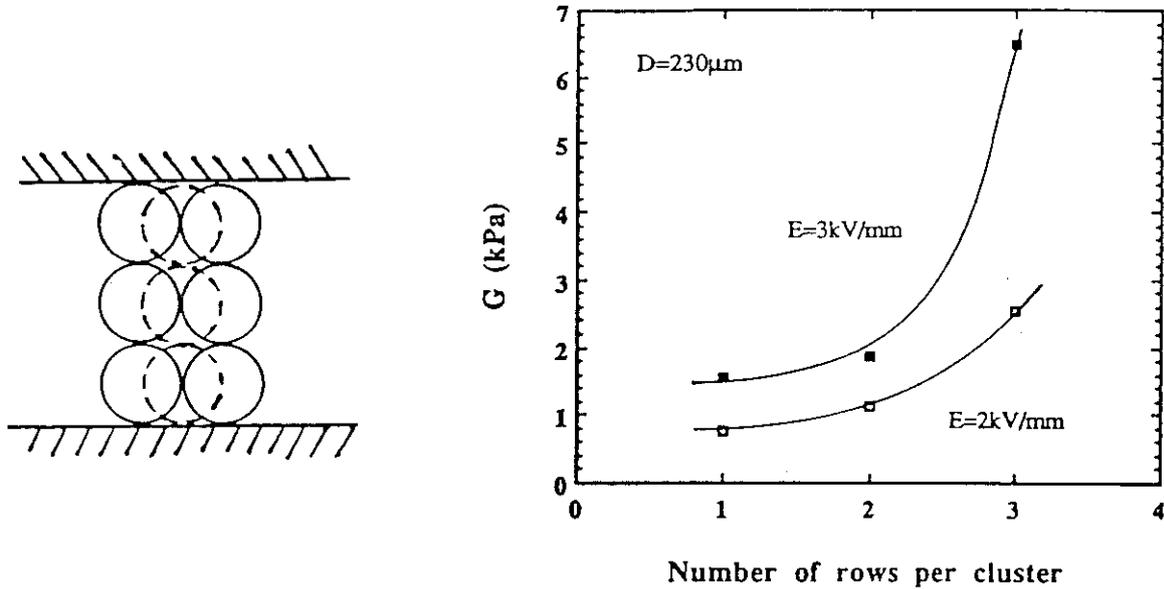
Ainsi, sous l'effet d'un champ électrique de l'ordre du kV/mm les particules forment des chaînes en quelques millisecondes et produisent un effet ER notable. Ces chaînes évoluent ensuite vers des agrégats ayant très certainement une structure bct (du moins dans le cas idéal de particules sphériques ayant le temps de s'organiser). Il semble néanmoins que l'évolution vers une structure bct complète demande des temps beaucoup plus importants que pour la formation des chaînes (plusieurs dizaines de secondes voire plusieurs minutes).

### III.2 Influence de la structure sur la contrainte seuil

Si nous voulons prédire la contrainte maximale transmissible par les fluides ER, il est nécessaire de connaître l'influence de la structure sur les mécanismes de rupture des agrégats.

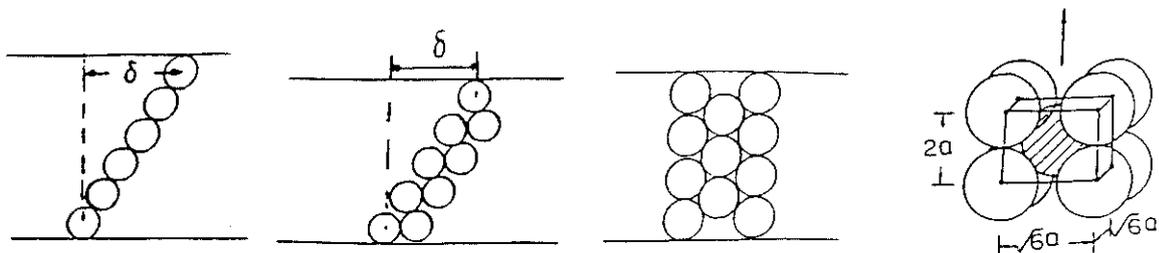
Chen et Conrad ont réalisé à l'aide de billes de verre de 230  $\mu\text{m}$  des expériences concernant la mesure de la contrainte transmise par une chaîne unique, une double chaîne et une triple chaîne. Les résultats montrent que la contrainte transmise augmente avec le nombre

de chaînes. C'est ainsi qu'un agrégat de 4 ou 5 chaînes conduit à une augmentation de la contrainte d'un facteur 10 à 20 (Fig. I.III.2) [Chen et Conrad, 1994].

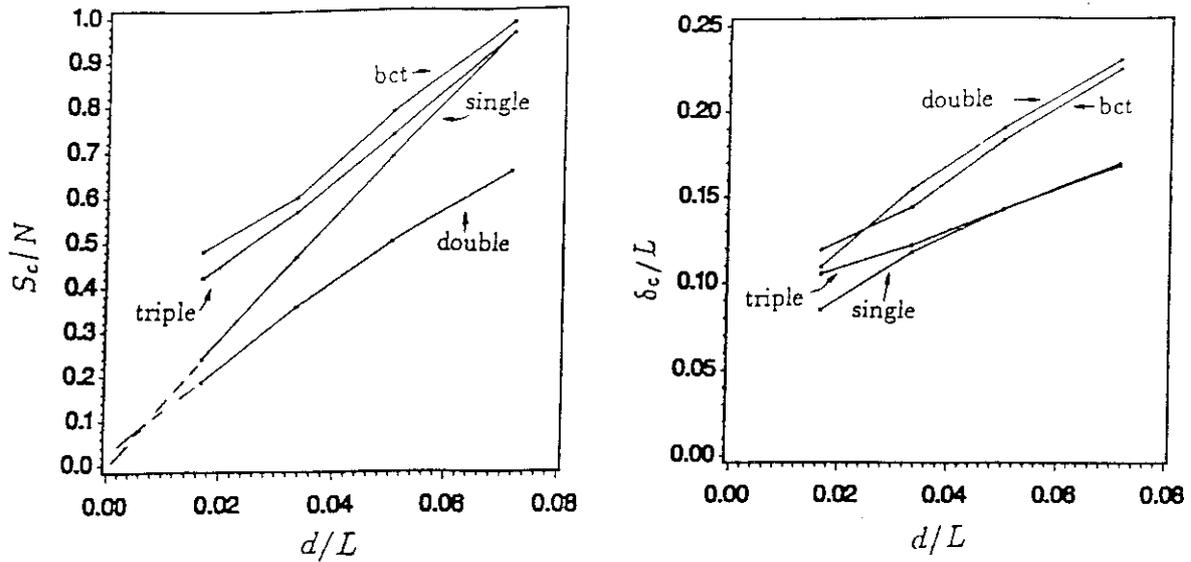


**Figure I.III.2** : [a] Différentes structures utilisées (1 chaîne, 2 puis 3) [b] Evolution du module élastique en fonction du nombre de chaînes. D'après Chen et Conrad, 1994.

A partir d'une simulation ne prenant en compte que les interactions dipôle-dipôle, Gulley et Tao ont étudié la contrainte transmise et le cisaillement maximal correspondant à la rupture de différentes structures (Fig. I.III.3). Les résultats sont représentés sur la figure I.III.4 où  $Sc$  est le module élastique normalisé,  $\delta c/L$  le cisaillement à la rupture,  $L$  la distance inter-électrodes,  $N$  le nombre de particules par chaînes et  $d$  le diamètre des particules [Gulley et Tao, 1993] :



**Figure I.III.3** : Structures étudiées : chaîne simple, double chaîne, triple chaîne et structure bcc. D'après Gulley et Tao, 1993.

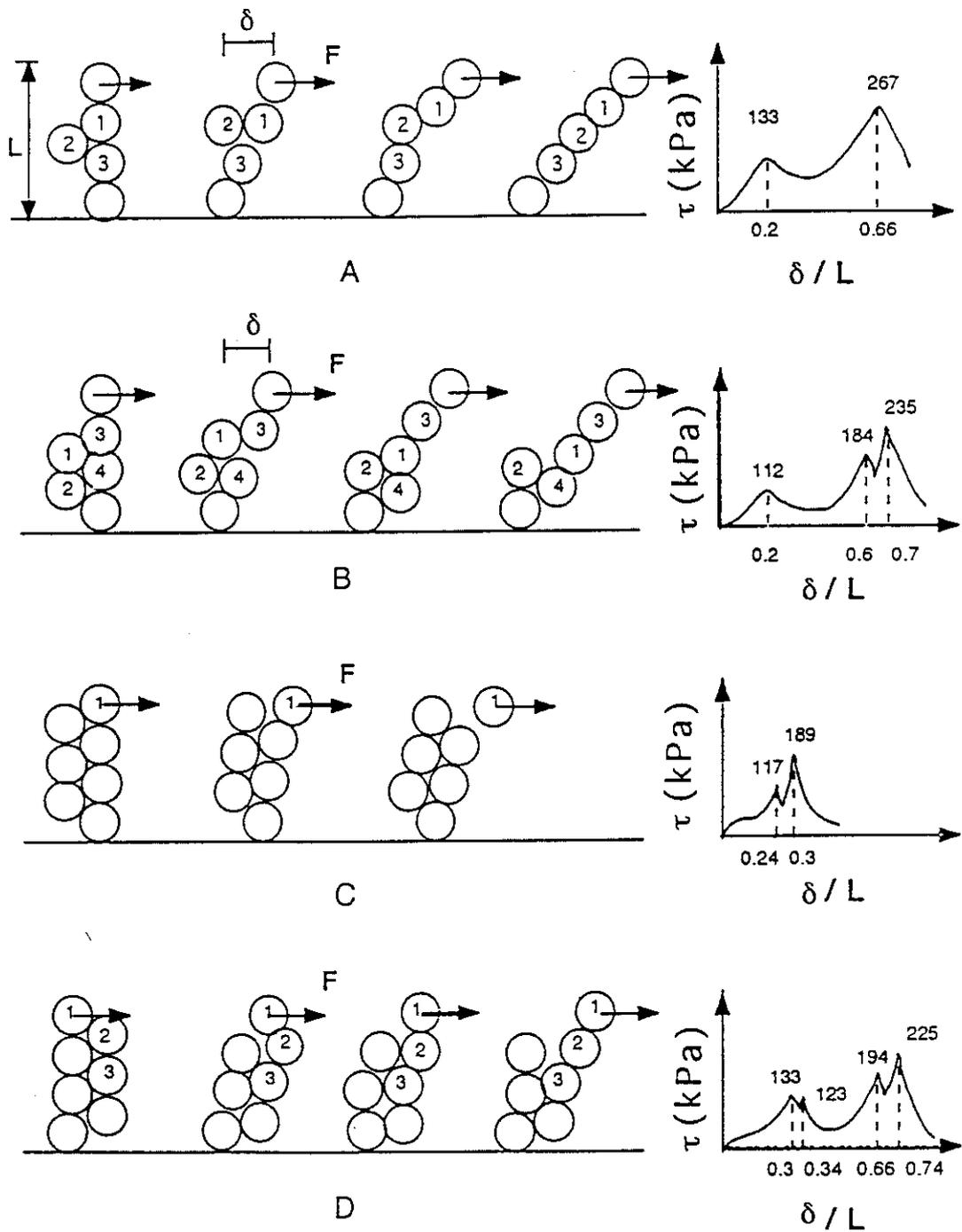


**Figure I.III.4** : Résultats. D'après Gulley et Tao, 1993.

Si les valeurs numériques sont difficilement comparables, il apparaît que qualitativement la structure des chaînes influe sur la contrainte transmise. Anderson prévoit pour des particules conductrices une augmentation de 20 à 30% de la contrainte par chaîne pour un agrégat par rapport à une structure en chaînes isolées [Anderson, 1994]. Bossis *et al.* avancent que, hormis pour une structure bct et pour une fraction volumique supérieure à 45%, la contrainte est plus sensible au nombre de chaînes par unité de surface qu'à leur structuration et Kraynik *et al.* pensent que la structure en chaînes isolées est la plus efficace [Bossis *et al.*, 1994.b - Kraynik *et al.*, 1992].

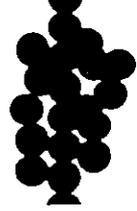
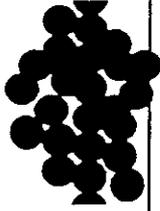
Au-delà de la structure interne des chaînes dans les agrégats, il apparaît qu'un paramètre très important concernant la valeur de la contrainte seuil est la valeur de la déformation de cisaillement pour laquelle la rupture de la chaîne s'effectue. Tang *et al.* ont montré en utilisant des particules magnétiques de 1,6 mm qu'au cours de la déformation la contrainte passait par plusieurs pics successifs avant la rupture (Fig. I.III.5) [Tang *et al.*, 1996]. Soulignons également les travaux de Lemaire *et al.* sur des particules magnétiques de 1 mm. Leurs résultats sont résumés sur la figure I.III.6 où les deux demi-sphères inférieure et supérieure sont fixées sur les surfaces du dispositif expérimental afin d'éviter tout glissement au niveau des électrodes [Lemaire *et al.*, 1996].

Ainsi, la structure des chaînes, leur nombre mais aussi leur mode de rupture influent sur la valeur de la contrainte transmise. Il semble cependant que les deux paramètres les plus importants sont le nombre de chaînes et la déformation de cisaillement correspondant à la rupture.



\*  $\tau = F / \pi a^2$

**Figure LIII.5** : Déformation de différents agrégats et contraintes de cisaillement correspondantes. D'après Tang *et al.*, 1996.

N particles	8	9	9	15	21	27
Structure						
Fmax (mN)	6	6.3	27	41	61	77

**Figure I.III.6** : Evolution de la contrainte suivant le nombre de particules dans l'agrégat. D'après Lemaire *et al.*, 1996.

### III.3 Influence du cisaillement sur la structuration

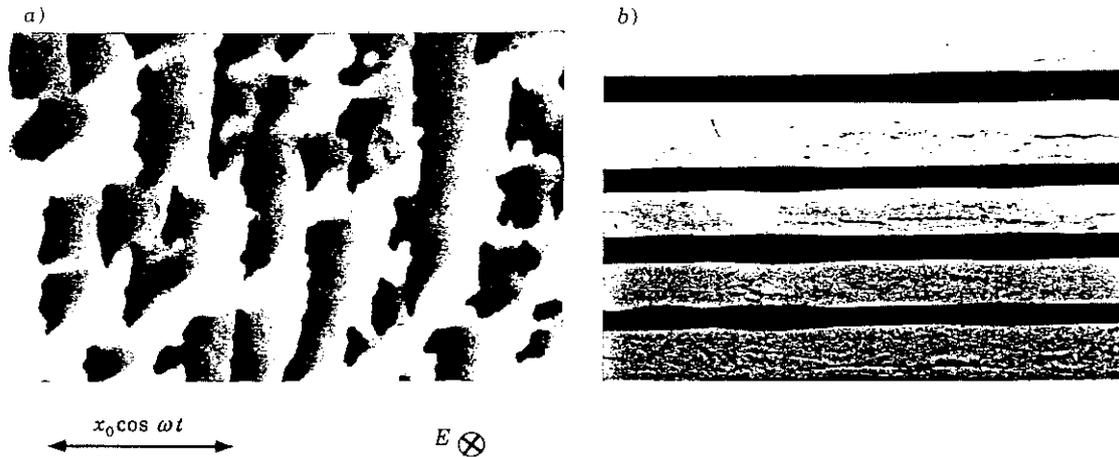
Après avoir précisé l'effet de la structuration des particules sur la contrainte seuil statique nous considérons maintenant la présence d'un cisaillement.

#### III.3.1 Organisation des chaînes :

Nous distinguerons successivement les deux types d'écoulement, alternatif et continu.

##### - Ecoulement alternatif :

Bossis *et al.* ont observé qu'en présence d'un cisaillement alternatif il y avait une réorganisation des agrégats [Bossis *et al.*, 1994.a]. Initialement la structure est composée d'agrégats isolés et la mesure du module élastique donne une valeur de l'ordre de 170 Pa. Pour une valeur de la déformation de cisaillement  $\gamma$  égale à  $10^{-2}$  les agrégats se regroupent et forment, en quelques minutes, des feuillets perpendiculaires à l'écoulement (Fig. I.III.7.a); le module élastique vaut alors environ 75 Pa. Pour  $\gamma = 1$  ils observent un nouveau changement de structure après quelques minutes de cisaillement : les feuillets s'organisent parallèlement à l'écoulement (Fig. I.III.7.b); le module élastique, mesuré à  $\gamma = 10^{-2}$  atteint une valeur de 1300 Pa.



**Figure I.III.7** : [a] Feuillettes perpendiculaires à l'écoulement [b] Feuillettes parallèles à l'écoulement. D'après Bossis et al., 1994.a.

Cette structuration due au cisaillement est également observée avec des suspensions non soumises à un champ électrique, elle est attribuée dans ce cas à des écoulements secondaires [Petit, 1991]. Cette modification de structure a naturellement une grande influence sur les caractéristiques des fluides ER.

*- Ecoulement continu :*

Nous n'avons pas connaissance d'études expérimentales concernant la structuration des agrégats lorsque les fluides ER sont soumis à un écoulement continu. Néanmoins, la formation de feuillettes parallèlement à l'écoulement est observée dans diverses simulations numériques [Whittle, 1990 - Melrose, 1992 - Melrose et Heyes, 1993]. Il n'est pas impossible que la structuration due à un cisaillement alternatif important corresponde à celle obtenue pour un écoulement continu [Bossis *et al.*, 1994.a].

On constate donc que le cisaillement modifie la disposition des agrégats de particules dans les fluides électrorhéologiques. Comme cette structuration a une influence importante sur la contrainte, on peut conclure que "le passé rhéologique" des fluides ER aura une influence sur ses caractéristiques.

**III.3.2 Rupture des chaînes :**

Lorsque les chaînes et les agrégats sont cisailés, ils vont s'incliner dans le sens du cisaillement puis se briser. Selon la valeur du taux de cisaillement, ils peuvent suivre des cycles de formation et de rupture ou bien se désagréger sous l'influence des forces

hydrodynamiques. Une des questions essentielles est de connaître le lieu de rupture des fibres : au niveau des électrodes ou en leur milieu ?

Jordan, Shaw et McLeish décrivent leurs observations expérimentales de la façon suivante : pour un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  de  $3 \text{ s}^{-1}$  la rupture n'est pas permanente, les chaînes partielles (ne reliant pas les deux électrodes) se rejoignent et forment des agrégats plus importants. Ces agrégats ont tendance à se briser au niveau de l'électrode, c'est-à-dire il glissent le long de l'électrode, alors que les structures plus fines (chaînes uniques ou agrégats fins) se brisent en leur milieu [Jordan *et al.*, 1992]. Ils décrivent les fluides ER sous cisaillement comme étant une structure en perpétuel mouvement, composée de chaînes reliant les électrodes, d'agrégats glissant le long d'une électrode et de chaînes partielles [McLeish *et al.*, 1991]. Le fait que les fibres fines se brisent dans leur longueur n'est pas étonnant car elles sont soumises à une instabilité de Peierls-Landau [Gulley et Tao, 1993].

Lorsque le taux de cisaillement augmente, la structure est de plus en plus dégradée par le cisaillement. Sprecher *et al.* observent la dégradation d'une suspension diluée en augmentant progressivement  $\dot{\gamma}$  [Sprecher *et al.*, 1987]. La rupture de l'échantillon se fait au milieu puis, progressivement, lorsque  $\dot{\gamma}$  augmente, la zone dans laquelle les chaînes sont brisées augmente en s'agrandissant vers les électrodes.

Klingenberg *et al.* observent le même type de comportement mais la dégradation se fait à partir d'une électrode avec une suspension relativement concentrée (20%) [Klingenberg *et al.*, 1991.c]. Pour un faible taux de cisaillement, les colonnes se déforment puis se cassent et se reforment continûment. Lorsque  $\dot{\gamma}$  augmente la structure se désagrège d'une manière continue jusqu'à complète disparition.

Le problème du glissement le long des électrodes est important. Tang *et al.* observent, dans le cas de suspensions magnétiques, que si les particules glissent, la contrainte est environ six fois plus faible qu'en l'absence de glissement [Tang *et al.*, 1996]. Lemaire et Bossis notent également une diminution de la contrainte dans une suspension magnétique lorsqu'il y a plus ou moins de glissement sur les parois suivant la rugosité des électrodes [Lemaire et Bossis, 1991]. Katsikopoulos et Zukoski ont fait une étude expérimentale en fonction de l'état de surface des électrodes dans les fluides ER et arrivent à la conclusion que la contrainte peut être augmentée en réduisant le glissement des particules sur les électrodes [Katsikopoulos et Zukoski, 1994.a]. En réalisant des rainures perpendiculaires à l'écoulement, ils augmentent la contrainte d'un facteur deux. Miyamoto et Ota ont montré que les forces de frottement entre les électrodes et les particules étaient déterminantes dans le transfert de la contrainte et qu'elles permettaient de savoir si on devait observer un glissement ou une rupture des chaînes [Miyamoto et Ota, 1994]. Signalons enfin les travaux de Monkman qui, en modifiant l'état de

surface de ses électrodes, obtient pour un embrayage une augmentation du couple d'un facteur deux [Monkman, 1991].

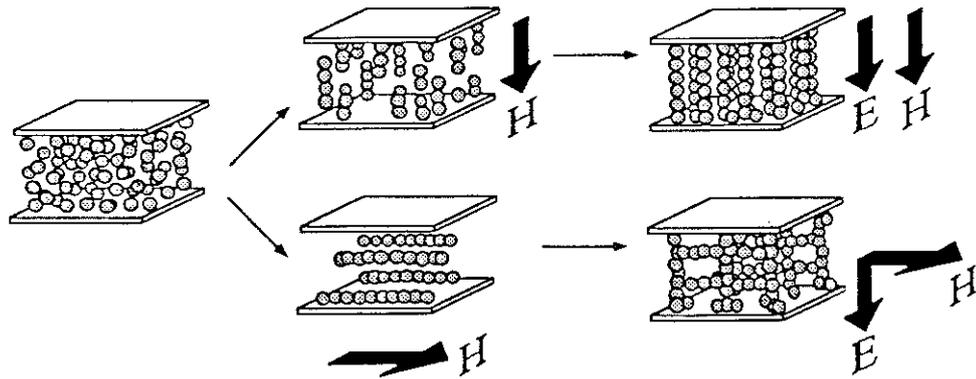
### **III.4 Autres facteurs susceptibles d'influencer les caractéristiques des fluides ER**

La structuration des particules sous forme de chaînes et d'agrégats est contrôlée par un grand nombre de paramètres : amplitude et fréquence du champ E appliqué, taux de cisaillement imposé, etc. Des facteurs moins connus peuvent jouer un rôle sur la structuration ou sur l'interaction entre les particules :

- Le mode d'application de la tension, directement ou par échelons successifs, donne des structures différentes. Dans le premier cas, les fibres sont fines et nombreuses alors que dans le second cas elles sont plus épaisses et moins nombreuses [Blackwood *et al.*, 1994.a].
- L'effet d'un cisaillement important provoque la rotation des particules polarisées. L'interaction entre les particules va donc dépendre de la rapidité avec laquelle la polarisation se réoriente [Block *et al.*, 1990 - Shih *et al.*, 1994].
- La géométrie et la distribution en taille des particules va certainement influencer la structure des agrégats et la façon dont ils vont se briser. Il est donc fort probable que ces paramètres aient une influence sur les performances des fluides ER.

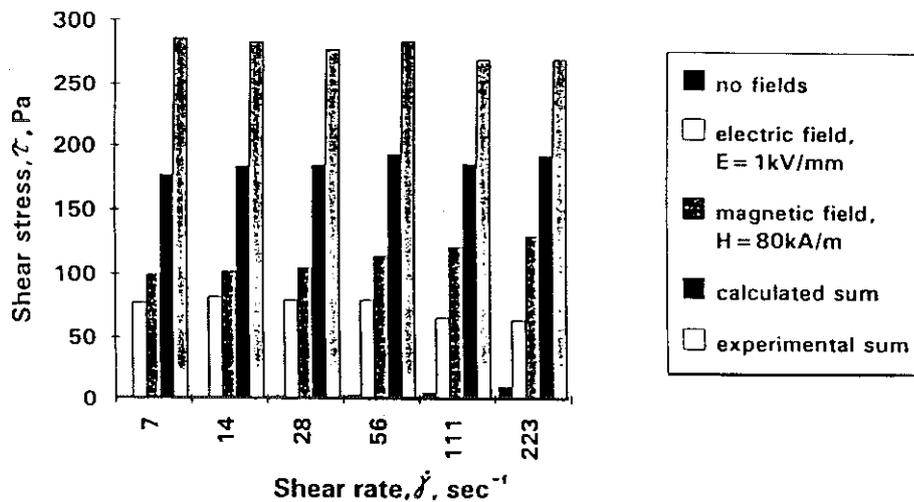
### **III.5 Effet de l'application simultanée d'un champ électrique et d'un champ magnétique**

Nous avons abordé précédemment l'incidence de la structuration sur l'effet ER en considérant les chaînes alignées dans le sens du champ électrique. Il existe également des structures dans lesquelles les agrégats sont connectés entre eux par des ponts de particules. Cette situation apparaît dans le cas d'un couplage entre un champ magnétique et un champ électrique, sur des particules MER [Koyama, 1996] (Fig. I.III.8).



**Figure I.III.8 :** Structuration en fonction de la direction des champs E et H. D'après Koyama, 1996.

La superposition d'un champ magnétique et d'un champ électrique conduit à un effet de synergie donnant une contrainte supérieure à la somme des contraintes obtenues séparément avec un champ électrique et un champ magnétique (Fig. I.III.9), même lorsque les champs sont dans la même direction et qu'il n'y a pas de ponts entre les agrégats [Kordonsky *et al.*, 1994 - Koyama, 1996].



**Figure I.III.9 :** Effet du champ électrique, du champ magnétique et de leur couplage. D'après Kordonsky *et al.*, 1994.

Il est également possible de rencontrer des fluides MER composés d'un mélange d'une part de particules sensibles au champ électrique et d'autre part, de particules sensibles au champ magnétique. [Fujita *et al.*, 1993].

### III.5 Conclusion

Lorsqu'une suspension électrorhéologique est soumise à un champ électrique, les particules qui la composent, forment des chaînes entre les électrodes. L'estimation du temps de formation de ces chaînes peut s'effectuer directement à partir de leur visualisation pour des suspensions de faibles concentrations ou indirectement en mesurant le temps de réponse de l'effet ER. Les mesures du temps de formation des chaînes et du temps de réponse des systèmes électrorhéologiques (commande, alimentation, dispositif, etc.) ont conduit à des valeurs de quelques millisecondes et nous pouvons considérer cet ordre de grandeur comme représentatif.

Dans un deuxième temps, avec une cinétique beaucoup plus lente, les chaînes se regroupent sous forme d'agrégats plus épais. Les approches théoriques et les études expérimentales ont abouti à l'idée qu'une structure tétragonale centrée était la plus probable. On peut toutefois remarquer que cette structure privilégiée est prédite et observée sur des particules sphériques monodispersées, or dans la pratique ce cas de figure est rare. D'autre part les approches théoriques sont réalisées à partir de considérations énergétiques qui dépendent du type d'interaction entre les particules et ce dernier point n'est pas encore bien résolu.

La connaissance de la structure des chaînes dans les agrégats et la façon dont ils se déforment et se brisent sont néanmoins essentielles si on veut estimer la contrainte transmise par les fluides ER. Si nous ajoutons à cela l'influence du cisaillement sur l'état final de la structure, nous avons certainement là une deuxième difficulté majeure à laquelle se heurte l'étude des fluides ER (après la description de l'interaction entre particules).

Rappelons enfin un dernier point qui ne concerne pas directement la structuration, mais qui peut avoir une grande influence sur le plan pratique : le glissement possible des chaînes au niveau des parois.

# Chapitre IV

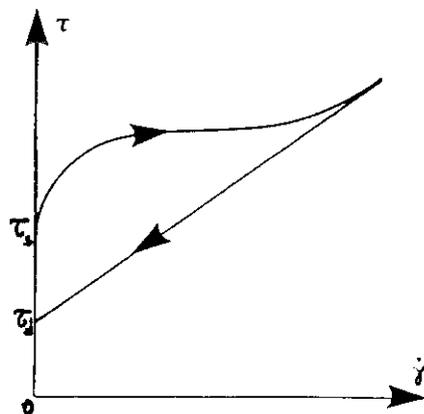
## Les propriétés macroscopiques

Après avoir abordé le problème de l'interaction entre les particules et celui de leur structuration nous nous intéressons maintenant aux propriétés macroscopiques des fluides ER à travers leurs caractéristiques rhéologiques et électriques.

### IV.1 Rhéogrammes

#### IV.1.1 Généralités :

Un rhéogramme  $\tau = f(\dot{\gamma})$  typique des fluides ER soumis à un champ électrique est représenté sur la figure I.IV.1. Ce rhéogramme correspond à celui d'un corps plastique thixotrope avec modification de la contrainte seuil : il présente une contrainte seuil statique ( $\tau_s$ ) et une contrainte seuil dynamique ( $\tau_d$ ) (Annexe A).



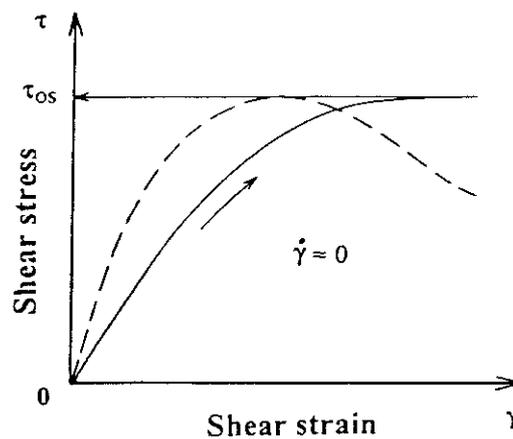
**Figure I.IV.1 :** Rhéogramme d'un corps plastique thixotrope. D'après Couarraze et Grossiord, 1991.

La contrainte seuil statique  $\tau_s$  correspond à la contrainte minimale nécessaire pour provoquer la rupture de la structuration et l'écoulement du fluide. Le comportement du fluide suit approximativement le modèle de Bingham d'équation rhéologique :

$$\tau(E, \dot{\gamma}) = \tau_d(E) + \eta_p \dot{\gamma}$$

où  $\tau_d$  est la contrainte seuil dynamique,  $\eta_p$  la viscosité plastique et  $\dot{\gamma}$  le taux de cisaillement. Il arrive que  $\tau_s$  et  $\tau_d$  soient confondus lorsque la précision des mesures ne permet pas de distinguer la courbe de charge et de décharge au début du cisaillement ( $\dot{\gamma} < 10$ ). La contrainte seuil dynamique est liée à l'augmentation de la dissipation visqueuse générée par les particules sous l'effet des interactions électrostatiques [Bossis *et al.*, 1992]. La viscosité plastique est souvent confondue avec la viscosité  $\eta_s$  de la suspension sans champ électrique. Elle est parfois notée  $\eta_\infty$ , ce qui correspond à la limite de la viscosité quand  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$ . L'hystérésis présentée par le rhéogramme  $\tau = f(\dot{\gamma})$  pour les faibles taux de cisaillement est un des phénomènes caractéristiques des fluides ER.

La contrainte seuil statique  $\tau_s$  est une des grandeurs importantes qui sert à évaluer les performances des fluides ER. Comme nous l'avons vu dans les paragraphes précédents, elle dépend de l'interaction entre les particules mais également de leur structuration. Pour mesurer cette contrainte seuil statique les rhéomètres à contrainte imposée sont les mieux adaptés. Sa mesure est également possible avec des rhéomètres à vitesse imposée, à condition d'opérer dans des conditions quasi-statiques ( $\dot{\gamma} \cong 0$ ). Les courbes ainsi obtenues correspondent aux rhéogrammes  $\tau = f(\gamma)$  et ont l'allure suivante (Fig. I.IV.2) :



**Figure I.IV.2** : Rhéogramme typique obtenu lors de la mesure de la contrainte seuil statique à l'aide d'un rhéomètre à vitesse imposée (ici  $\tau_{os}$ ).

Le modèle de Bingham n'est pas le seul à être utilisé en électrorhéologie. Les fluides ER sont parfois modélisés par un modèle de Casson présentant un comportement fluidifiant [Klingenberg *et al.* - 1991.b - Melrose et Heyes, 1992] :

$$\tau^{0,5} = \tau_d^{0,5} + (\eta_p \dot{\gamma})^{0,5}$$

Toutefois, compte tenu de la complexité du problème (effet du champ électrique et du cisaillement sur la structuration et la désagrégation de la suspension) on comprend qu'il soit difficile de trouver un "modèle macroscopique universel" décrivant parfaitement les fluides ER. Comme nous allons le voir le modèle de Bingham décrit assez bien le comportement des fluides ER pour des faibles taux de cisaillement ou pour des taux très importants.

Pour les  $\dot{\gamma}$  faibles et pour les champs électriques suffisamment importants nous pouvons considérer que  $\tau_d \gg \eta_s \dot{\gamma}$  et  $\tau \sim \tau_d$  (la structuration est dominée par les forces induites par le champ électrique). Inversement pour des  $\dot{\gamma}$  importants  $\eta_s \dot{\gamma} \gg \tau_d$  et  $\tau \sim \eta_s \dot{\gamma}$  (la suspension est dominée par les forces hydrodynamiques). Pour les valeurs de  $\dot{\gamma}$  intermédiaires il y a compétition entre les forces électrostatiques et les forces hydrodynamiques. Pour tenir compte du fait que la structure se dégrade progressivement en fonction de  $\dot{\gamma}$  Klingenberg *et al.* ont introduit un terme supplémentaire ( $\tau_{ex}$ ) représentant l'influence des forces hydrodynamiques sur les chaînes non complètement détruites [Klingenberg *et al.*, 1991.c]. Ils considèrent une relation de Bingham modifiée :

$$\tau(\dot{\gamma}, E) = \tau_d(E) + \eta_s \dot{\gamma} + \tau_{ex}(\dot{\gamma}, E)$$

L'expression de  $\tau_{ex}$  est déduite expérimentalement dans cette zone :

$$\tau_{ex} \approx 5[\tau_d(E) + \eta_s \dot{\gamma}]$$

#### **IV.1.2 Représentation à l'aide du nombre de Mason :**

En partant de la relation de Bingham, Marshall *et al.* font intervenir le nombre de Mason défini dans le Chap.II §1.2 [Marshall *et al.*, 1989]. La viscosité apparente  $\eta$  de la suspension est donnée par :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}}$$

La relation de Bingham permet alors d'écrire :

$$\eta = \frac{\tau_d}{\dot{\gamma}} + \eta_s \Leftrightarrow \frac{\eta}{\eta_s} = \frac{\tau_d}{\eta_s \dot{\gamma}} + 1$$

comme  $\tau_d$  est proportionnel à l'interaction électrostatique, il est possible d'écrire :

$$\frac{\tau_d}{\eta_s \dot{\gamma}} \propto \frac{K}{Mn}$$

où  $K$  est une constante dépendant de la fraction volumique  $\phi$  ( $K \propto \phi$ ). On obtient alors :

$$\frac{\eta}{\eta_s} = \frac{K}{Mn} + 1$$

Si on trace  $\eta/\eta_s$  en fonction de  $Mn$  on obtient pour des  $Mn$  très grands (forces hydrodynamiques dominantes)  $\eta/\eta_s = 1$ , la viscosité apparente est égale à la viscosité sans champ; pour les  $Mn$  faibles  $\eta/\eta_s \propto Mn^{-1}$  (Fig. I.IV.3). Ce type de représentation est fréquemment utilisé [Gow et Zukoski, 1990 - Klingenberg *et al.*, 1991.c - Melrose et Heyes, 1993 - Foulc *et al.*, 1996].

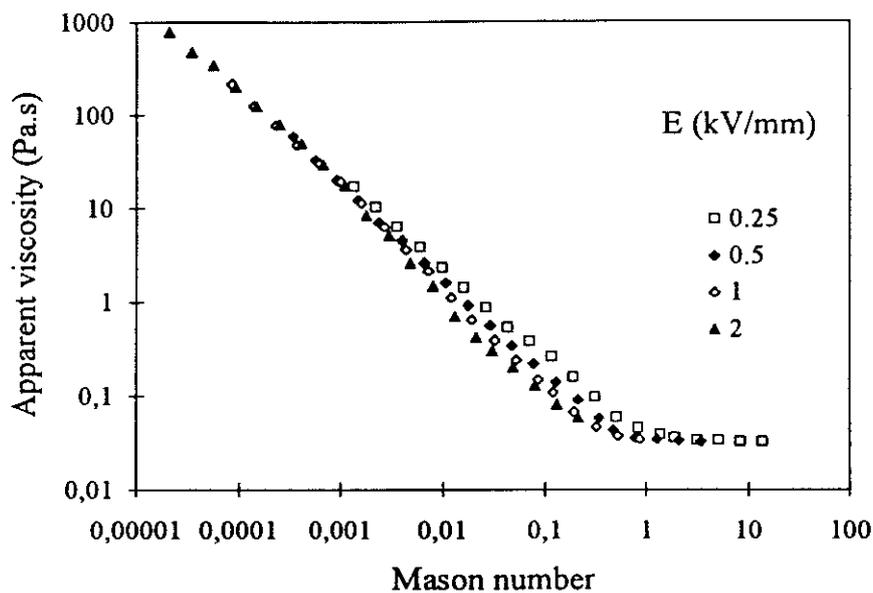


Figure I.IV.3 : Représentation de  $\eta/\eta_s$  en fonction de  $Mn$ . D'après Foulc *et al.*, 1996.

## IV.2 Phénomènes de thixotropie dans les fluides ER

Au début de ce chapitre nous avons vu la différence qu'il pouvait y avoir entre une courbe de charge et une courbe de décharge dans les rhéogrammes des fluides électrorhéologiques. Nous avons évoqué dans le chapitre III (§3) le fait que sous l'influence d'un cisaillement, une structuration particulière apparaissait et nous avons vu également que cette structuration influait sur les caractéristiques rhéologiques des fluides ER.

Le premier de ces phénomènes est relié à la dynamique de séparation de deux particules à l'intérieur d'une chaîne. Il se manifeste par la dépendance de l'allure des courbes de charge en fonction du taux d'incrément de la contrainte imposé (Fig. I.IV.4) [Lemaire *et*

al., 1992.a]. La courbe de charge présente trois zones : une première zone où le fluide ER est assimilé à un gel solide et où il n'y a pas d'écoulement ( $\tau < \tau_s$ ). Une deuxième zone (plateau) où les fibres se cassent et durant laquelle la structuration disparaît peu à peu. Au-delà de cette zone, la suspension se comporte comme un fluide de Bingham. Pour la courbe de décharge le comportement est celui d'un liquide de Bingham. L'hystérésis est due au fait que dans le premier cas (courbe de charge) on part d'un fluide figé et on augmente progressivement  $\dot{\gamma}$  ce qui détruit la structuration. Dans le deuxième cas, on part d'une suspension déstructurée et on diminue  $\dot{\gamma}$ , il est très probable que dans ce cas la structure ne se reforme pas.

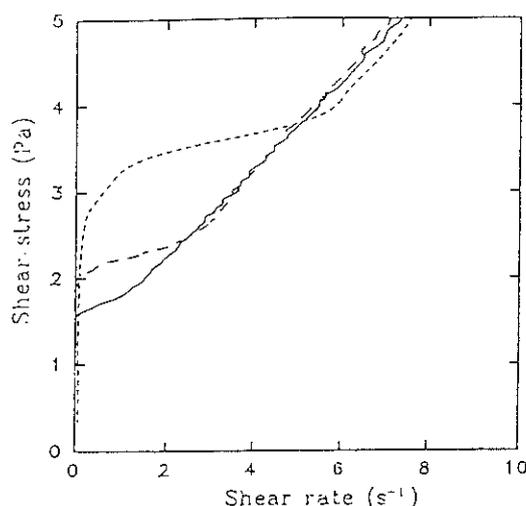
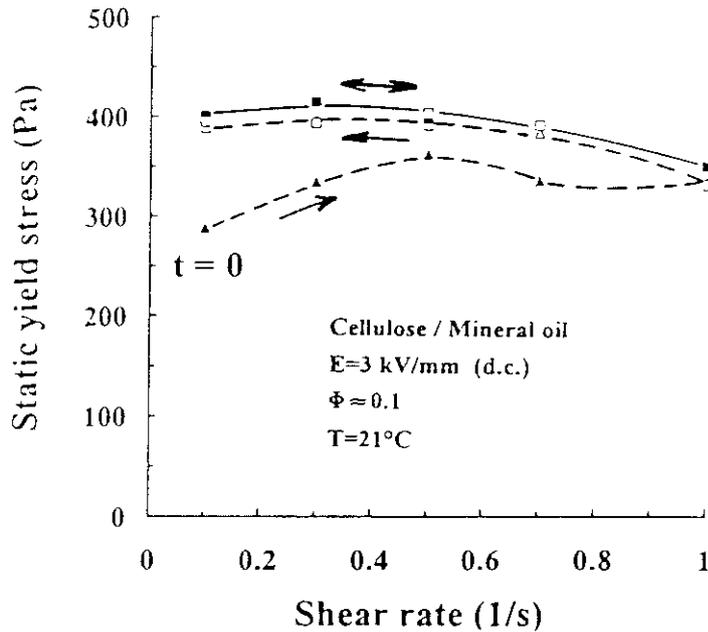


Figure 3. Courbes de charge obtenues pour différents taux d'incrément de contrainte,  $\sigma^a=ct$ , et pour le même champ électrique que la Figure 1; (—)  $c=4 \cdot 10^{-3}$  Pa/s (courbe d'équilibre); (---)  $c=1.2 \cdot 10^{-2}$  Pa/s; (- - -)  $c=3.3 \cdot 10^{-1}$  Pa/s. Chaque nouvelle courbe de charge est effectuée après homogénéisation de la suspension sans champ appliqué.

**Figure I.IV.4** : D'après Lemaire et al., 1992.a..

Le deuxième phénomène est dû à la structuration sous l'effet du cisaillement des agrégats en feuillets perpendiculaires ou parallèles à l'écoulement (Chap.III §3). Kimura *et al.* rapportent que, pour des mesures de contrainte en écoulement alternatif, les courbes ne deviennent stables qu'après plusieurs cycles et que pour le premier cycle le tracé est dans certains cas très nettement différent des cycles suivants [Kimura *et al.*, 1994]. Ils observent une diminution de la contrainte au cours des cycles, ce qui laisse supposer qu'ils se trouvent dans le cas où des feuillets sont créés perpendiculairement au cisaillement.

Des mesures de contrainte pour des valeurs croissantes puis décroissantes du gradient de vitesse  $\dot{\gamma}$  sur un fluide composé de cellulose dans de l'huile minérale ont souligné la présence d'un phénomène thixotropique uniquement pour le premier cycle de variation (Fig. I.IV.5) [Foulc et Atten, 1994].

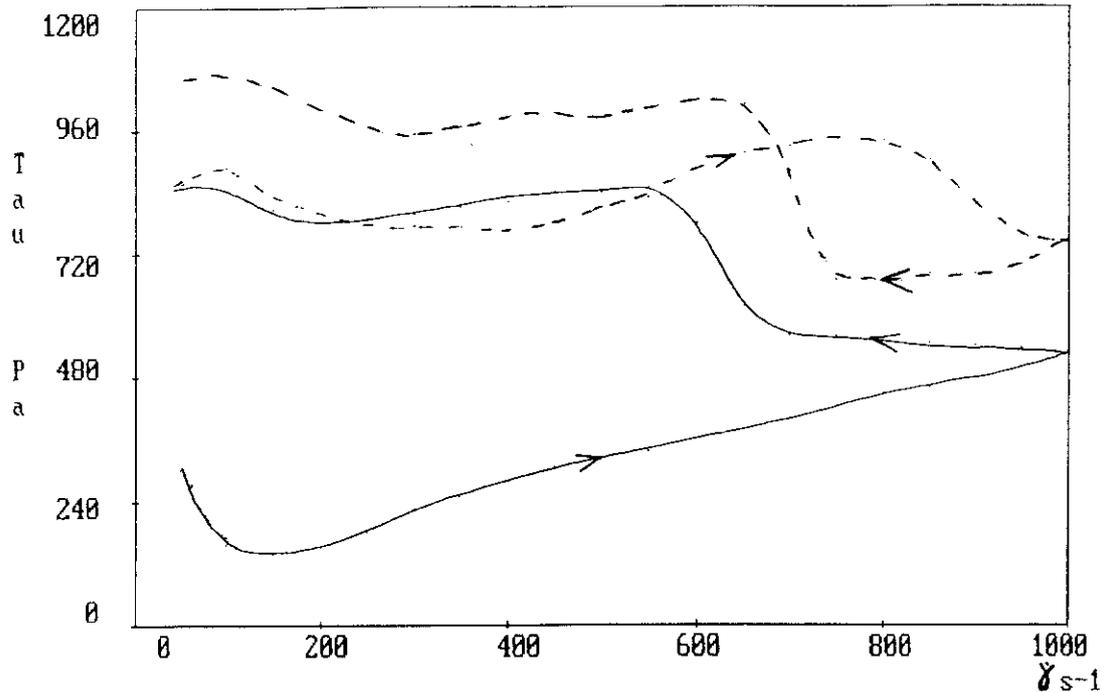


**Figure I.IV.5 :** Mesure de la contrainte en fonction de  $\dot{\gamma}$  sur une suspension de cellulose/huile minérale. D'après Foule et Atten, 1994.

Pour des taux de cisaillement plus élevés le comportement des suspensions devient plus complexe. La figure I.IV.6 illustre un exemple de phénomène de structuration dû à l'écoulement. La courbe en trait plein correspond au premier cycle de cisaillement et la courbe en pointillés au deuxième cycle; la suspension avait été initialement cisailée sans champ électrique. Dans le cas où la suspension est initialement cisailée sous un champ électrique plus important que celui pour lequel sont effectuées les mesures, l'hystérésis est inversée. C'est-à-dire que l'on observe lors du premier cycle une diminution de la contrainte.

L'évolution de ces rhéogrammes est donc dans ce cas très éloignée de celle correspondant à un modèle de Bingham.

Il nous faut conclure en précisant que les caractéristiques rhéologiques des fluides ER dépendent d'une part des conditions d'essais (vitesse d'incrémation du cisaillement rapide ou lente) mais également du conditionnement antérieur, mécanique et électrique, de la suspension. La procédure de mesure utilisée lors des expériences est donc très importante. C'est ainsi que Klingenberg *et al.* appliquent un champ électrique pendant plusieurs minutes et un cisaillement pendant 500 secondes avant de faire la mesure; ils obtiennent de la sorte des mesures reproductibles [Klingenberg *et al.*, 1991.c]. Yen et Achorn conditionnent également leur fluide électriquement et mécaniquement avant de relever les mesures [Yen et Achorn, 1991].



**Figure I.IV.6 :** Rhéogrammes d'une suspension de polyaniline/huile minérale.

### IV.3 Influence de la fraction volumique

La concentration des particules dans la suspension est un des paramètres importants de l'effet ER. Elle est exprimée soit en fraction volumique (volume des particules/volume de la suspension) soit, plus rarement, en fraction massique. Les fractions volumiques rencontrées dans les fluides ER sont le plus souvent comprises entre 10 et 30% mais il n'est pas rare de rencontrer, dans certaines études expérimentales, des fractions volumiques de l'ordre de quelques pour cent.

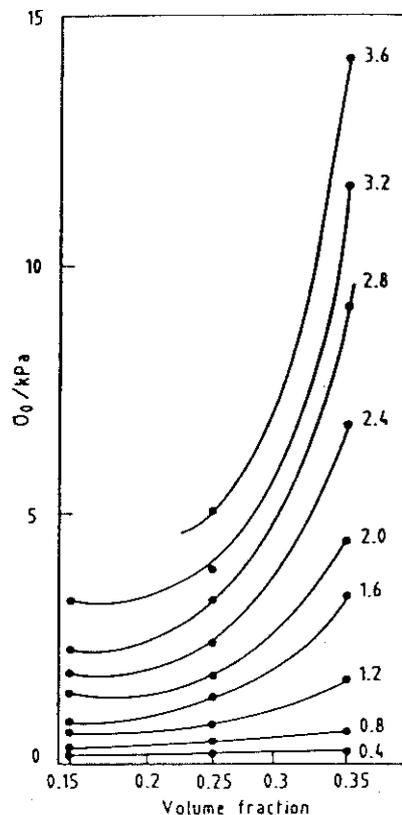
La plupart des résultats montrent que la contrainte augmente jusqu'à des fractions volumiques d'environ 30 à 40 %, puis atteint un maximum. Klingenberg *et al.* obtiennent ce type de comportement à l'aide de simulations numériques utilisant le modèle de polarisation [Klingenberg *et al.*, 1991.a]. La contrainte augmente linéairement avec la fraction volumique puis sature pour des valeurs voisines de 0,4 et ensuite décroît. Ils vérifient leurs prédictions expérimentalement, sauf la phase de décroissance. Ils notent également que la fraction volumique correspondant à la transition entre une structure comportant essentiellement des fibres uniques et une structure de type agrégats correspond au plateau observé pour la contrainte. Bonnecaze et Brady donnent une explication similaire : aux faibles fractions volumiques les chaînes sont séparées et n'interagissent pas entre elles, c'est-à-dire que les

interactions à l'intérieur d'une chaîne sont plus importantes que les interactions entre les chaînes et la contrainte de cisaillement est alors proportionnelle à  $\phi$ ; quand la fraction volumique augmente, les chaînes commencent à interagir et l'énergie électrostatique d'une chaîne décroît plus rapidement que l'augmentation du nombre de chaînes, il en résulte un maximum vers  $\phi \sim 0,4$  suivi d'une décroissance [Bonnecaze et Brady, 1992.b]. Bossis *et al.* ont étudié la variation de  $\tau$  avec la fraction volumique pour différentes structures des chaînes [Bossis *et al.*, 1994.b]. Ils obtiennent une augmentation linéaire de  $\tau$  avec  $\phi$  pour l'ensemble des structures étudiées sauf pour la structure bct où, après une augmentation linéaire, ils observent une diminution de la contrainte pour des valeurs de  $\phi$  supérieure à 0,45. Ota et Miyamoto trouvent également une augmentation linéaire de  $\tau$  avec  $\phi$  puis une saturation à partir de  $\phi = 0,4$  [Ota et Miyamoto, 1993].

Expérimentalement il est possible de distinguer deux comportements. Premièrement la contrainte augmente linéairement avec la fraction volumique (ou la fraction massique). [Yatsuzuka *et al.*, 1993.a]. Mais il est plus fréquent de rencontrer une variation de la contrainte avec la fraction volumique de la forme suivante (Fig. I.IV.7) [Sprecher *et al.*, 1987 - Block *et al.*, 1990 - Yen et Achorn, 1991] :

$$\tau \propto \phi^n$$

où  $n$  varie avec le champ électrique et peut prendre une valeur comprise entre 0,5 et 3.



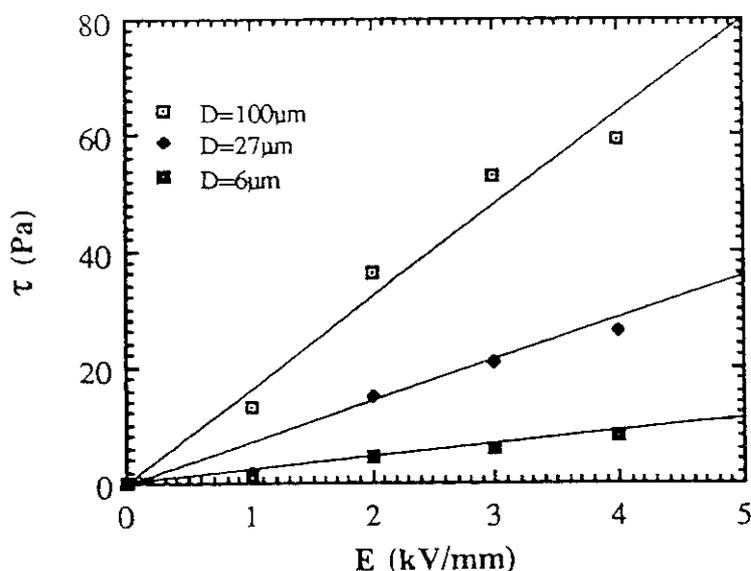
**Figure I.IV.7** : Variation de la contrainte seuil statique en fonction de la fraction volumique ( $E$  en kV/mm). D'après Block *et al.*, 1990.

## IV.4 Influence de la taille et de la géométrie des particules

Comme nous l'avons signalé, ces paramètres peuvent jouer sur l'interaction entre les particules mais également sur leur structuration. Il est difficile de cerner avec précision l'influence que peuvent avoir ces deux aspects sur les propriétés rhéologiques car peu d'études abordent le sujet.

### IV.4.1 Effet de la taille des particules :

Une des études les plus intéressantes est celle réalisée par Shih et Conrad [Shih et Conrad 1994]. Ils utilisent des distributions de grains de verre de tailles centrées sur 6  $\mu\text{m}$ , 27  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  pour réaliser différents fluides ayant une fraction volumique de 20%. Les résultats font apparaître une augmentation de la contrainte avec la taille des grains de verre (Fig. I.IV.8).



**Figure I.IV.8** : Variation de la contrainte en fonction du champ électrique pour différentes tailles de particules ( $\dot{\gamma} = 2 \text{ s}^{-1}$ ). D'après Shih et Conrad, 1994.

L'évolution de la contrainte en fonction du diamètre  $D$  des particules se fait dans leur cas suivant une loi en  $D^{0.5}$  et ils observent également que pour les petites particules la structuration dans l'entrefer est beaucoup plus dégradée que dans le cas des grosses particules.

Cette augmentation de la contrainte avec la taille des particules est confirmée par Asako *et al.* sur des particules sphériques [Asako *et al.*, 1996]. Yatsuzuka *et al.* notent

également, sur une suspension de cellulose de fraction massique 20%, une contrainte plus élevée quand le diamètre des particules augmente [Yatsuzuka *et al.*, 1993.b].

Toutefois, il est important de regarder si ces comportements sont obtenus en régime statique ou dynamique. En effet, Shih et Conrad observent une augmentation de la contrainte avec la taille des particules pour des taux de cisaillement faibles ( $\dot{\gamma} = 2 \text{ s}^{-1}$ ), puis pour des taux de cisaillement élevés ( $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ ) cette tendance disparaît. Asako *et al.* donnent des valeurs pour  $\dot{\gamma} = 200 \text{ s}^{-1}$  et Yatsuzuka *et al.* observent, pour des sphères, une diminution de l'écart de contrainte, due à l'effet de taille, lorsque le taux de cisaillement augmente tandis que dans le cas de bâtonnets un effet contraire apparaît.

Il faut donc être prudent dans ce type d'étude car si la force d'attraction entre les particules peut dépendre de la taille il en va de même pour les forces hydrodynamiques. L'effet de taille relatif des particules, par rapport à la distance interélectrodes, peut également avoir une influence.

#### **IV.4.2 Effet de la forme des particules :**

Dans tous les modèles les particules sont assimilées à des sphères. En pratique, il est possible de distinguer deux grandes catégories : les particules sphériques ou quasi-sphériques et les particules ayant une forme de bâtonnets caractérisés par le rapport de leur longueur sur leur diamètre  $L/D$ .

Randall *et al.* mesurent sur une suspension de Titanate de Bismuth une contrainte plus élevée qu'avec d'autres matériaux de même type et l'attribuent à la forme en plaquette des particules [Randall *et al.*, 1994]. Yatsuzuka *et al.* notent également que les particules ayant une forme de bâtonnet donnent une contrainte plus élevée [Yatsuzuka *et al.*, 1993.b]. Ils attribuent cet effet à la structuration des chaînes qui est différente dans le cas de particules allongées par rapport à celle obtenue avec des particules sphériques. Kanu et Shaw ont étudié des suspensions avec des rapports de  $L/D = 4$  et  $L/D = 10$  [Kanu et Shaw, 1996]. Ils trouvent que plus le rapport  $L/D$  est grand, plus l'effet est important et attribuent ce changement à l'augmentation de la polarisation. Ils observent également que sous l'effet d'un cisaillement le comportement des suspensions en champ continu ou en champ alternatif (60 Hz) est différent. En champ continu la contrainte diminue pour des valeurs croissantes de  $\dot{\gamma}$  alors qu'elle augmente en champ alternatif. Ceci souligne une fois de plus la difficulté de l'étude des suspensions ER due à l'interdépendance de nombreux paramètres.

### **IV.4.3 Effet de la dispersion :**

L'influence de la dispersion en taille et/ou en forme des particules est très peu connue mais joue certainement un rôle important dans la structuration des fluides ER ainsi que dans la façon dont vont se briser les agrégats.

## **IV.5 Propriétés viscoélastiques des fluides ER**

Nous avons jusqu'à présent considéré les fluides ER soumis à un taux de cisaillement constant et donc dans un mode d'écoulement continu. Nous allons maintenant aborder le cas où les fluides ER sont soumis à un cisaillement alternatif (mesure dynamique).

La grandeur rhéologique qu'il nous faut considérer est le module de cisaillement  $G$ . Il est défini par la relation :

$$\tau = G.\gamma$$

où  $\gamma$  est la déformation de cisaillement imposée et  $\tau$  la contrainte mesurée. Le cisaillement est sinusoïdal et s'écrit :

$$\gamma = \gamma_o.\sin(\omega.t)$$

$\gamma_o$  représentant l'amplitude maximale de la déformation de cisaillement. La contrainte  $\tau$  s'écrit dans le cas linéaire :

$$\tau = \tau_o \sin(\omega.t + \delta)$$

où  $\delta$  est le déphasage entre la contrainte et le cisaillement.

Le module de cisaillement complexe s'écrit :

$$G(\omega) = G'(\omega) + iG''(\omega)$$

où  $G'(\omega)$  est le module de conservation et  $G''(\omega)$  le module de perte.

Dans le cas des fluides électrorhéologiques où, comme nous l'avons vu, la suspension se réorganise sous l'effet du cisaillement, le module  $G$  dépend de nombreux paramètres. On peut considérer que :

$$G = f(\phi, E, \gamma_o, \omega, t)$$

Vu le nombre important de paramètres il est difficile de tirer des conclusions des quelques résultats publiés concernant les propriétés viscoélastiques des fluides ER. En particulier une question importante reste souvent en suspens, au bout de combien de temps après le début du cisaillement les mesures sont-elles effectuées? En effet, nous avons vu que la suspension se structurait sous l'effet du cisaillement (Chap.III §3), Il est donc important de connaître l'état rhéologique initial du fluide pour interpréter et comparer les mesures.

Généralement, en l'absence de champ électrique, la suspension se comporte comme un liquide newtonien [Otsubo *et al.*, 1992.b]. Lorsque le champ est appliqué et que les fibres se forment, la suspension passe d'un comportement visqueux à un comportement viscoélastique [Gamota et Filisko, 1991.a].

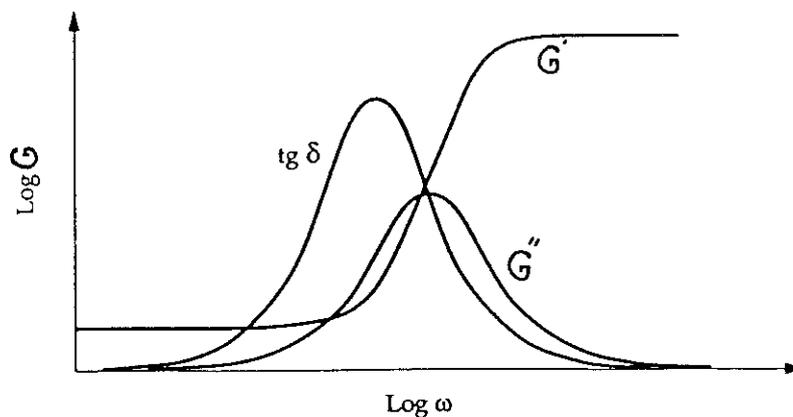
Concernant la réponse du fluide à une variation d'amplitude du cisaillement on peut distinguer plusieurs situations. En effet, la structuration des fluides ER soumis à un champ électrique montre qu'au-delà d'une certaine valeur de la déformation de cisaillement les fibres commencent à se briser. Gamota et Filisko décrivent le comportement rhéologique des fluides de la façon suivante : un premier domaine dans lequel les fibres ne sont pas brisées et où le fluide ER ne s'écoule pas, il se comporte comme un fluide viscoélastique linéaire; un deuxième domaine, domaine de transition, où les fibres commencent à se déformer et où la réponse devient non-linéaire, nous sommes certainement là dans une zone où les agrégats ne se brisent pas mais se déforment, c'est-à-dire qu'il y a une réorganisation des particules à l'intérieur des agrégats, la non-linéarité provenant de cette modification structurelle; enfin un troisième domaine où le fluide s'écoule et où il a un comportement viscoplastique, cette zone correspond à l'écoulement rencontré dans le cas des forts cisaillements permanents [Gamota et Filisko, 1991.a].

Lorsque le cisaillement est faible, les fluides ER ont un comportement viscoélastique linéaire [Shulman *et al.*, 1989- Yen et Achorn, 1991 - Otsubo *et al.*, 1992.b]. La valeur de la déformation de cisaillement correspondant à la transition entre un comportement linéaire et un comportement non-linéaire est en pratique de l'ordre de  $10^{-2}$  [Yen et Achorn, 1991 - Otsubo *et al.*, 1992.b]. A partir de simulation, Whittle avance une valeur de  $5.10^{-2}$  et Klingenberg indique qu'elle est certainement supérieure à  $10^{-3}$  [Whittle, 1990 - Klingenberg, 1993]. Pour des valeurs du cisaillement plus importantes la structure se dégrade et la réponse des fluides ER n'est plus linéaire [Shulman *et al.*, 1989 - Yen et Achorn, 1991 - Gamota et Filisko, 1991.a]. La transition entre un comportement viscoélastique et un comportement viscoplastique (rupture des chaînes) dépend du champ E et de la fraction volumique  $\phi$ . Les mesures de contrainte seuil statique montrent que cette transition s'effectue pour des valeurs de  $\gamma_0$  comprises entre 0,5 et 0,6.

Il semble que dans le domaine viscoélastique linéaire à faible cisaillement, le module  $G$  soit indépendant de la valeur du champ électrique. Ainsi, pour une déformation  $\gamma_0$  de  $4 \cdot 10^{-3}$ , Yen et Achorn obtiennent une variation de  $G'$  indépendante de  $E$  [Yen et Achorn, 1991]. Inversement, pour  $\gamma_0 > 10^{-2}$ , une dépendance de  $G'$  et  $G''$  en fonction de  $E$  est fréquemment observée [Gamota et Filisko, 1991.a et 1991.b - Jordan *et al.*, 1992 - Otsubo *et al.*, 1992.b] Enfin Xu et Liang pour  $\gamma_0 = 1$  trouvent également une dépendance en fonction de  $E$  (mais pour un tel cisaillement le fluide a probablement un comportement viscoplastique) [Xu et Liang, 1991].

McLeish, Jordan et Shaw proposent un modèle dans lequel ils attribuent  $G'$  aux chaînes reliant les électrodes, et  $G''$  à la fraction de chaînes incomplètes [McLeish *et al.*, 1991 - Jordan *et al.*, 1992]. Pour des valeurs de  $\gamma_0$  inférieures à 0,04 ils obtiennent des valeurs de  $G'$  et  $G''$  indépendantes de  $\gamma_0$  et  $G' \gg G''$ . Lorsque  $\gamma_0$  augmente  $G' \approx G''$  et leur module décroît. Xu et Liang notent une décroissance de  $G'$  et  $G''$  lorsque  $\gamma_0$  augmente de 0,01 à 0,02 [Xu et Liang, 1991].

En ce qui concerne l'effet de la fréquence (pulsation  $\omega$ ) de la déformation de cisaillement Otsubo *et al.* décrivent les variations des paramètres viscoélastiques des fluides ER (pour  $\gamma_0 = 0,01$ ) à l'aide d'une fonction de Maxwell. Pour des valeurs plus élevées de la déformation de cisaillement ( $\gamma_0 = 0,05$ ) ils notent que  $G'$  et  $G''$  sont indépendants de  $\omega$ , cette zone correspondant à la rupture des chaînes. Xu et Liang observent également une indépendance de  $G'$  et  $G''$  en fonction de  $\omega$  pour  $\gamma_0 = 1$  [Xu et Liang, 1991]. A l'aide d'une simulation numérique Klingenberg obtient le même comportement pour des agrégats [Klingenberg, 1993]. Gamota et Filisko utilisent un modèle de Zener pour lequel les allures de  $G'$  et  $G''$  sont inchangées mais où les valeurs relatives de  $G'$  et  $G''$  sont modifiées; ce qui rend mieux compte de la variation de  $\text{tg}(\delta) = G''/G'$  (Fig. I.IV.9) [Gamota et Filisko, 1991.a et 1991.b].



**Figure I.IV.9 :** Variation de  $G'$ ,  $G''$  et  $\text{tg}(\delta)$  en fonction de  $\omega$  pour un modèle de Zener. D'après Oudet, 1994.

Il est clair que, vu le nombre important de paramètres intervenant dans l'étude de la viscoélasticité, il est difficile de procéder à une expérimentation complète et d'expliquer avec précision le comportement viscoélastique des fluides ER.

## IV.6 Caractéristiques électriques des fluides ER

Le courant circulant dans les fluides ER a longtemps été considéré comme indépendant de l'effet ER et totalement néfaste en raison de l'échauffement qu'il produit et de la consommation énergétique qu'il entraîne. Toutefois, nous avons montré qu'en champ continu un courant était nécessaire pour obtenir un effet ER notable; nous développerons cet aspect dans la deuxième partie de notre travail.

La relation entre les propriétés électriques et rhéologiques des fluides ER n'a été prise en compte qu'assez récemment. Une des premières constatations est que le courant est lié à la formation des fibres. En effet, on observe que lorsque le fluide ER est cisailé et que les fibres se cassent, le courant traversant le fluide diminue [Stangroom, 1983 - Lemaire *et al.*, 1992.a]. On peut donc imaginer que la mesure du courant permet d'obtenir des informations sur l'état de structuration des fibres à l'intérieur d'un fluide ER [Lemaire *et al.*, 1992.b - Foulc *et al.*, 1996].

En champ continu le courant qui traverse le fluide ER est lié à la conduction des particules (le courant passant à travers le liquide étant généralement négligeable devant celui passant par les fibres) qui dépend des propriétés physico-chimiques des particules et de l'interface solide/liquide.

En champ alternatif il faut prendre en compte l'effet capacitif du milieu. Si les particules ont une permittivité relative  $\epsilon_p$  et le liquide une permittivité relative  $\epsilon_f$ , la suspension, une fois les fibres formées, a une permittivité égale à [Hasted, 1973] :

$$\epsilon_s = \epsilon_f + \phi (\epsilon_p - \epsilon_f)$$

Le courant capacitif est alors donné par :

$$I = C \frac{dV}{dt} = A \epsilon_s \frac{dV}{dt}$$

où A est une constante.

Le courant est donc difficilement évitable en champ alternatif et, comme nous le verrons, nécessaire en champ continu. Il y aura donc toujours un courant qui passera à travers un fluide ER. Un des points recherchés dans l'optimisation des fluides est d'obtenir un effet ER significatif avec un courant le plus faible possible, le paramètre caractéristique pouvant être par exemple le rapport de la contrainte seuil et de la densité de courant ( $\tau/j$ ).

## IV.7 Contrainte de traction et de compression

Jusqu'à présent nous avons considéré uniquement les fluides ER soumis à une contrainte de cisaillement. Comme nous l'avons signalé au début de ce texte, on peut également les solliciter en traction ou en compression.

Très peu d'études ont été réalisées sur ce sujet. Signalons simplement celles menées par Sproston *et al.* dans lesquelles est mis en avant le fait qu'un fluide ER présentant une contrainte seuil de 4 kPa en cisaillement peut donner une contrainte de 18 kPa en traction et de 44 kPa en compression (les essais en traction et en compression ont été réalisés à champ constant) [Sproston *et al.*, 1991]. Des dispositifs fonctionnant en traction et en compression ont été testés et ont donné des résultats encourageants pour de futures applications [Stanway *et al.*, 1992 - Sproston *et al.*, 1994].

## IV.8 Conclusion

Nous avons évoqué dans le chapitre précédent la structuration des agrégats sous l'effet du cisaillement. Nous venons de voir que cette structuration n'est pas sans conséquence sur les propriétés rhéologiques des fluides ER. Les phénomènes de thixotropie qu'elle induit sont intéressants sur le plan "académique" mais posent des problèmes sur le plan pratique où ils constituent un inconvénient. En effet, les caractéristiques rhéologiques des fluides ER ne dépendent plus alors uniquement des valeurs du champ et du cisaillement mais aussi du conditionnement, électrique et mécanique, du fluide ainsi que du temps. La connaissance des conditions initiales avec lesquelles les mesures sont effectuées est donc indispensable pour pouvoir évaluer et comparer les caractéristiques des fluides ER.

Nous nous apercevons également qu'il y a, au niveau de l'étude de l'influence de la taille et de la forme des particules sur les propriétés des fluides ER, un champ d'investigation dans lequel beaucoup de travail reste à accomplir.



# Chapitre V

## Les matériaux

Ce chapitre est axé sur les matériaux constituant les fluides électrorhéologiques et magnétorhéologiques. L'étude que nous présentons n'est pas exhaustive, car le nombre de matériaux susceptibles de donner un effet ER est très élevé, mais elle prend en compte la plupart des constituants liquides et solides couramment rencontrés et détaille quelques cas particuliers intéressants.

Il nous faut tout d'abord bien distinguer le rôle de la phase liquide et de la phase solide. La phase liquide est généralement constituée d'un liquide diélectrique de grande résistivité et de faible viscosité ( $< 50$  cP). Les liquides les plus fréquemment rencontrés sont : l'huile silicone, les huiles minérales et les hydrocarbures chlorés. La nature de la phase liquide n'est en général pas considérée comme essentielle. En effet, même si l'on peut attendre une augmentation linéaire de la contrainte seuil avec la permittivité relative du liquide, l'accent est mis principalement sur la phase solide. Les liquides utilisés dans les fluides ER ont en général des permittivités relatives de l'ordre de 2 à 3. Néanmoins certains hydrocarbures chlorés ont une permittivité voisine de 6 et il est possible d'envisager une augmentation de la contrainte d'un facteur 2 à 3 par rapport aux liquides non polaires (huile minérale, huile silicone). Conrad et Chen ont réalisé une étude avec des particules de même nature dispersées dans différents liquides et observent effectivement une telle tendance [Conrad et Chen, 1994].

Concernant la phase solide deux types de matériaux peuvent être considérés : les matériaux "extrinsèques" et les matériaux "intrinsèques". Dans le premier cas, l'effet ER est dû à la présence d'une substance, en général de l'eau, adsorbée à la surface et/ou dans le volume des particules si celles-ci sont poreuses. Les particules ne jouent alors pratiquement qu'un rôle de support. Ce type de matériau a été le premier à être utilisé mais le fait que l'effet ER soit dépendant de la présence d'un additif pose des problèmes importants de stabilité (évaporation, corrosion, etc.). Depuis quelques années sont apparus les matériaux dits "intrinsèques". Dans leur cas, l'effet ER est directement lié aux propriétés physico-chimiques des particules. Il n'est pas exclu que la présence d'un additif puisse également intervenir sur

les performances de ces fluides mais ce n'est pas là le mécanisme essentiel. Il est, de toute manière, impossible d'éliminer totalement la présence d'eau dans les particules car il existe toujours une certaine quantité d'eau fortement liée aux particules (eau structurale). Néanmoins, il est possible de déterminer des critères permettant de distinguer les deux types de matériaux.

- D'une manière générale, les matériaux comportant moins de 5% d'eau sont considérés comme intrinsèques.
- L'activité ER des matériaux extrinsèques augmente avec la température jusqu'au environ de 50-60°C puis décroît de manière irréversible (évaporation).
- Il n'y a pas d'activité dans les systèmes extrinsèques pour des températures inférieures à 0 °C et supérieures à 100 °C.

Les systèmes extrinsèques fonctionnant grâce à la présence d'eau ont de nombreux inconvénients pratiques :

- Leur domaine de fonctionnement en température est relativement étroit.
- L'eau provoque des problèmes d'électrolyse et de corrosion.
- Les fluides sont relativement instables au cours du temps.
- Les suspensions sont difficilement reproductibles.
- L'eau provoque des liaisons entre les particules qui peuvent conduire à l'agrégation irréversible des particules.

Si dans le cas des systèmes extrinsèques la nature de la particule n'a que peu d'importance, elle est prédominante dans le cas des systèmes intrinsèques. Il existe plusieurs catégories de matériaux intrinsèques que nous décrirons par la suite mais nous abordons tout d'abord le cas des matériaux extrinsèques.

## **V.1 Les matériaux extrinsèques**

Ils sont constitués d'un matériau "porteur" et d'un additif. Cet additif peut être la cause unique de la polarisation interfaciale ou provoquer, ou du moins faciliter, la dissociation d'espèces ioniques présentes dans ou sur les particules et ainsi induire une polarisation interfaciale. Nous présentons ci-dessous les matériaux les plus couramment utilisés.

- La cellulose et l'amidon (*starch*) :

Les formules chimiques de la cellulose et de l'amidon étant très proches nous pouvons considérer que ces matériaux ont sensiblement le même comportement vis-à-vis de l'absorption de l'eau ou d'autres espèces chimiques et donc le même comportement ER. Les particules ont généralement des tailles de l'ordre de quelques dizaines de microns. L'effet dépend de la teneur en eau et a été étudié en détail par Uejima dans un liquide chloré [Uejima, 1972]. D'autres études ont été réalisées avec de l'huile minérale [Thurston et Gaertner, 1991], de l'huile silicone [Stevens *et al.*, 1985] et de l'huile végétale [Chen et Conrad, 1993]. Les mesures ont été effectuées en champ continu et également en champ alternatif (50Hz). Chen et Conrad obtiennent pour une suspension à 28% contenant des particules avec 9% d'eau (en poids) une contrainte de 560 Pa sous 2 kV/mm (DC). Yatsuzuka *et al.* réalisent des mesures sur de la cellulose ayant une forme de bâtonnet et obtiennent pour une suspension à 20%, 1,5 kPa pour 3 kV/mm et pour  $\dot{\gamma} = 80 \text{ s}^{-1}$  [Yatsuzuka *et al.*, 1993.a].

- Les fluides à base de silice :

Ils sont fréquemment associés à de l'huile silicone. Une étude réalisée par Otsubo *et al.* concernant l'absorption de l'eau en fonction des liaisons chimiques présentes à la surface des particules conduit à la conclusion que la présence de groupements chimiques (silanol groups) favorise l'effet ER; ils obtiennent à l'aide de sphères monodispersées de taille 5  $\mu\text{m}$  une contrainte de 2 à 3 kPa sous 3 kV/mm (DC) pour à  $\dot{\gamma} = 300 \text{ s}^{-1}$  [Otsubo *et al.*, 1991, 1992.a et 1992.b]. D'autres études ont été réalisées avec des particules de gel de silice (forme particulière de silice hydratée de formule  $\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) [Winslow, 1949 - Chen *et al.*, 1993] :

Signalons à titre d'exemple un fluide commercial à base de silice : ERX-02 - Lord Chem. Corp., utilisé par certains chercheurs [Wong et Shaw, 1990 - Jordan *et al.*, 1992]. Une autre utilisation de la silice se fait sous la forme de billes de verre soit avec un verre de silice, en général très isolant, soit avec un verre ordinaire (silicates alcalins) où des ions métalliques assurent une conductivité de nature électrolytique [Hill et Steenkiste, 1991 - Chen *et al.*, 1992 - Klingenberg *et al.*, 1993 - Shih et Conrad, 1994].

- Les fluides à base de sels de polyméthacrylate de lithium :

Ces fluides sont basés sur des particules de polyméthacrylate de lithium dispersées dans un hydrocarbure chloré [Marshall *et al.*, 1989], une huile silicone [Lingard *et al.*, 1989] ou une huile paraffinique chlorée [Yen et Achorn, 1991]. La teneur en eau des particules varie de 15 à 19%. Dans ces particules, les ions lithium sont fortement liés aux groupements carboxylate et l'eau vient solvater les ions de lithium et accroître leur mobilité, ce qui favorise la polarisation des particules et l'apparition de l'effet ER.

## V.2 Les matériaux intrinsèques

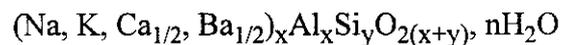
Plusieurs catégories sont à considérer suivant le type de polarisation des particules : polarisation à l'échelle moléculaire ou polarisation interfaciale. La polarisation interfaciale peut être due à une conduction de type ionique ou de type électronique.

### V.2.1 Les conducteurs ioniques :

On peut distinguer deux catégories : les conducteurs ioniques organiques (résines échangeuses d'ions, polymères) et non organiques (aluminosilicates). Si ces matériaux présentent un effet ER sans additif, il faut remarquer que l'adjonction d'eau peut intervenir sur la dissociation des espèces ioniques et donc modifier leur comportement (comme dans le cas des sels de polyméthacrylate de lithium).

#### - Les aluminosilicates :

Les aluminosilicates amorphes ou cristallins (zéolites) sont fréquemment rencontrés en électrorhéologie. Ces matériaux contiennent des cations métalliques provenant de la substitution au cours de leur synthèse d'atomes de silicium par des atomes d'aluminium accompagnés d'atomes métalliques. Ces cations ne peuvent pas pénétrer à l'intérieur du matériau et restent donc sur sa surface. La structure poreuse de ces matériaux offre une surface importante puisque 97% de la surface est située à l'intérieur de la particule. Leur formule s'écrit :



La mobilité des molécules d'eau et des cations leur confère des propriétés physico-chimiques remarquables, en particulier ils ont une grande capacité à échanger des cations au contact de solutions. Cette faculté d'échange des cations est plus faible dans les zéolites déshydratées [Calas *et al.*, 1965].

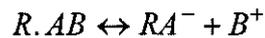
Conrad *et al.* utilisent des particules de zéolite de 2  $\mu\text{m}$  dans de l'huile silicone sous champ continu et ils relient l'évolution de l'activité ER de ces fluides en fonction de la température avec la diffusion des cations métalliques ( $\text{Na}^+$ ) [Conrad *et al.*, 1991]. Dans une autre étude ils utilisent des zéolites avec plusieurs liquides pour différentes concentrations [Sprecher *et al.*, 1992]. Filisko *et al.* emploient la zéolite  $\text{K}_9\text{Na}_3[(\text{AlO}_2)_{12}(\text{SiO}_2)_{12}]$  dans de l'huile paraffinique; avec des particules déshydratées de taille comprise entre 10 et 50  $\mu\text{m}$ , ils obtiennent 3,5 kPa sous 2 kV/mm (DC) [Filisko et Radzilowski, 1990 - Gamota et Filisko, 1991.a et 1991.b]. Ces auteurs ont également étudié l'influence de la nature du cation métallique et du niveau de substitution Si/Al dans les aluminosilicates sur l'effet ER [Filisko et Wang, 1994 - Schubring et Filisko, 1994].

- Les conducteurs ioniques organiques :

Nous avons précédemment évoqué le cas de la cellulose et des sels de polyméthacrylate de lithium. Nous les avons classés dans la catégorie "matériaux extrinsèques" car ils nécessitent généralement une quantité d'eau supérieure à 5% pour être efficaces. Ici nous abordons des matériaux pour lesquels l'eau joue un rôle mais où sa teneur reste inférieure à 5%. Ces matériaux pourraient être classés comme "semi-intrinsèques".

Deux types de conducteurs ioniques peuvent être distingués : les résines échangeuses d'ions dont la matrice polymère sert de support et pour lesquelles la présence d'un solvant est souvent nécessaire pour assurer le déplacement des contre-ions et les polymères solvatants où ce sont directement les macromolécules du polymère qui permettent le déplacement des espèces ioniques (sels métalliques). Dans ce cas, le déplacement des charges se fait par un mécanisme de solvation-désolvation des ions par des chaînes flexibles. Cette conductivité dépend donc de la température de transition vitreuse (mouvements segmentaires rapides) ainsi que de la réticulation (restreint le mouvement des chaînes). Notons de plus que cette conduction ne se produit que dans la phase amorphe [Armand, 1993].

Schématiquement les résines échangeuses sont des matériaux présentant l'équilibre suivant :



où R est une matrice polymérique, AB est le composé susceptible de se dissocier, A<sup>-</sup> est l'ion fixe et B<sup>+</sup> est le contre-ion. Dans ce cas l'effet ER dépend de la nature de l'ion fixe et du contre-ion ainsi que de la teneur en eau [Sugimoto, 1977]. Treasurer *et al.* étudient également les polyélectrolytes dans de l'huile paraffinique et sous champ continu. [Treasurer *et al.*, 1991]. Ils observent que l'effet n'est pas directement relié à la nature du contre-ion ni à celle de la matrice mais plutôt à la valeur de la constante de dissociation du contre-ion.

Bloodworth et Wendt utilisent un polymère solvant basé sur une structure de polyuréthane [Bloodworth, 1994]. Les molécules de polyuréthane jouent le rôle de solvant solide vis-à-vis de sels métalliques de lithium. L'étude présentée fait intervenir la teneur en Li<sup>+</sup> ainsi que la structure interne de la particule [Bloodworth et Wendt, 1994]. L'augmentation de la réticulation diminue à la fois la conductivité des particules et l'effet ER. Ils obtiennent une contrainte de 2,5 kPa pour 3 kV/mm et un courant inférieur à 90 μA/cm<sup>2</sup>.

Enfin des particules constituées de polystyrène sulfoné sont parfois utilisées [Filisko et Wang, 1994 - Asako *et al.*, 1994 et 1996]. Filisko et Wang présentent une étude en fonction du degré de sulfonation des particules dispersées dans une huile paraffinique et observent une augmentation de l'effet ER avec le taux de sulfonation. Asako *et al.* indiquent des résultats sur le même type de particules dans de l'huile silicone ayant soit une sulfonation en surface soit en volume. Leur étude se fait également en présence d'un taux variable d'eau. Ils obtiennent pour un champ électrique de 6 kV/mm (60 Hz), une fraction volumique de 30% et un taux d'humidité de 4% une contrainte de 6 kPa et un courant de l'ordre de 100 μA/cm<sup>2</sup>.

### **V.2.2 Les conducteurs électroniques :**

Le mécanisme intrinsèque impliqué dans l'effet ER est une polarisation interfaciale due à une conductivité électronique. Les principaux matériaux utilisés sont des polymères semi-conducteurs. Ce sont des polymères conjugués (alternance de simples et doubles liaisons) pour lesquels la conductivité est due au déplacement d'électrons libres le long des chaînes polymériques et, contrairement aux polymères conducteurs ioniques, la conductivité augmente avec la cristallinité et la réticulation [Schultz, 1974]. Leur conductivité peut être modifiée lors d'une réaction de dopage (oxydo-réduction) au cours de laquelle les doubles liaisons donnent ou reçoivent un électron. Pour des raisons d'électroneutralité, des contre-ions sont simultanément insérés dans le polymère ce qui leur confère également une conductivité ionique. L'alternance de simples et doubles liaisons crée une super orbitale électronique qui permet le déplacement des électrons (ou des trous) le long de la chaîne polymérique. Deux aspects interviennent dans la conduction de ces polymères : le transport intra-chaînes et le transport inter-chaînes (saut d'électrons entre les chaînes). Pour plus de détails il est possible de se reporter aux références : Andre, François et Bidan (1993). Ces polymères offrent une grande gamme de conductivité en fonction du taux de dopage, comme le montre la figure V.1.

Un des polymères les plus utilisés en électrorhéologie, en raison de sa facilité de dopage-dédopage, est la polyaniline (Pani) [Gow et Zukoski, 1990 - Block *et al.*, 1992 - Katsikopoulos et Zukoski, 1994.b - Webber, 1994 - Koyama *et al.*, 1994]. Blackwood *et al.* utilisent un composé proche de la polyaniline, le poly(o-toluidine) [Blackwood *et al.*, 1994.b]. Block *et al.* étudient des dérivés du poly(acène quinone) et en particulier le poly(anthracènequinone) avec lequel ils obtiennent, pour une fraction volumique de 20% et un champ électrique de 2 kV/mm (DC), une contrainte de 2 kPa et pour une fraction volumique de 35% et un champ électrique de 3,6 kV/mm une contrainte de 14 kPa [Block *et al.*, 1990 - Block *et al.*, 1992]. Xu *et al.* étudient un polymère semi-conducteur à base de polyacrylonitrile [Xu et Liang, 1991 - Xu *et al.*, 1992].

### **V.2.3 Les matériaux à polarisation "moléculaire" :**

Les fluides ER basés sur ce type de matériaux ne fonctionnent que pour des champs électriques alternatifs. Différents matériaux ( $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{BaTiO}_3$ , etc.) ont été étudiés [Garino *et al.*, 1992 - Ginder et Davis, 1994 - Randall *et al.*, 1994]. Ces fluides ne fonctionnent que pour des champs électriques ayant une fréquence élevée ( $> 50$  Hz), en champ continu il apparaît une déposition électrophorétique. Les contraintes obtenues sont de l'ordre de 100 à 200 Pa pour une fraction volumique de 20% et un champ de 1 kV/mm (1000 Hz).

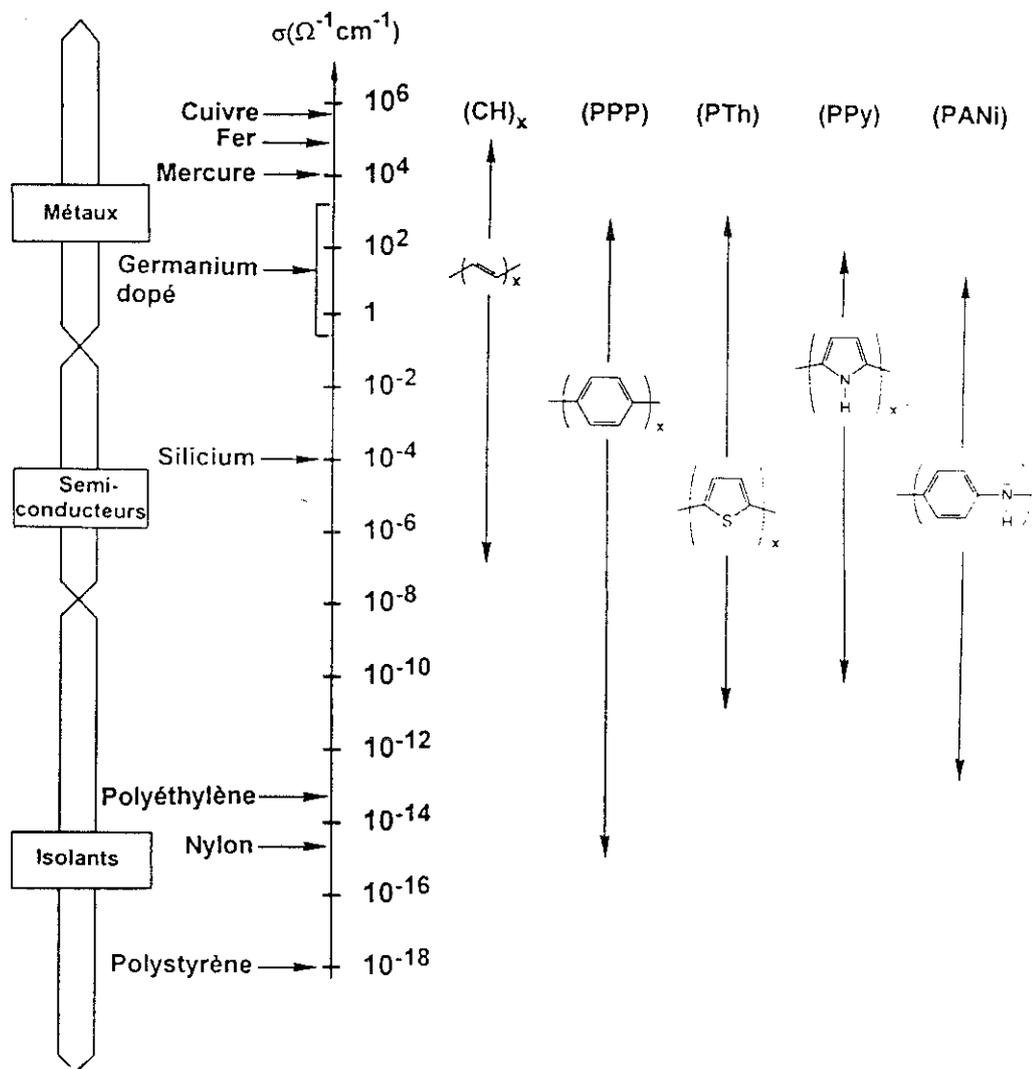
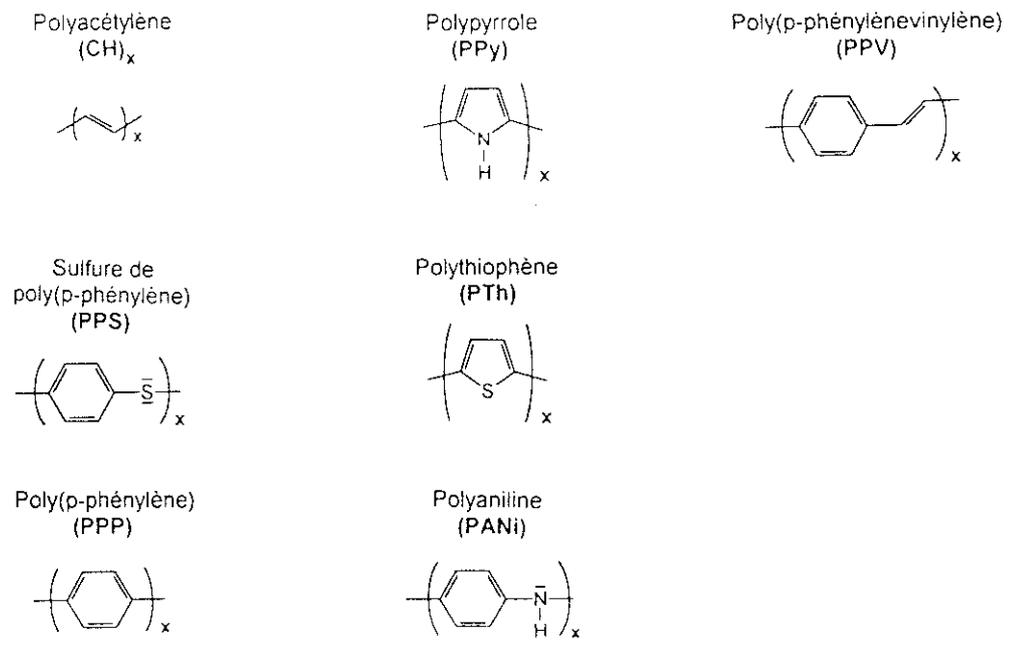


Figure I.V.1 : Principaux polymères semi-conducteurs et gammes de conductivité [Bidan, 1993].

### V.3 Les matériaux multicouches

Comme nous l'avons déjà souligné, les propriétés volumiques des matériaux ne sont pas toujours déterminantes, une couche superficielle "active" peut suffire à produire un effet ER (par exemple de l'eau absorbée en surface). Inversement des particules métalliques hautement conductrices nécessitent une couche isolante sur leur surface pour éviter d'avoir une conduction électrique trop importante.

Kuramoto *et al.* ont synthétisé des particules de silice entourées d'une couche de polyaniline [Kuramoto *et al.*, 1994]. A partir de polyaniline fortement dopée ils obtiennent une augmentation notable de la contrainte seuil. Pollack se sert de particules de polyaniline recouvertes de "polysaccharide" [Pollack, 1994]. Le fait de recouvrir la polyaniline provoque une diminution du courant d'un facteur important (environ huit) alors que la contrainte seuil statique augmente légèrement. Il est possible de rencontrer d'autres combinaisons : des particules de silice recouvertes d'hydroxyde de fer [Fe(OH)<sub>3</sub>] [Tanaka *et al.*, 1994]; des particules d'aluminium recouvertes d'une couche isolante [Kimura *et al.*, 1994]; des particules de fer entourées d'une couche non-conductrice [Kumakura *et al.*, 1994].

Enfin il est possible de concevoir des particules formées par un corps de polymère entouré d'une couche conductrice elle-même entourée d'une couche isolante (3 couches) [Asahi Chem. (brevets)].

### V.4 Les fluides ER à base de solutions homogènes

Ce sont des solutions de cristaux liquides dans lesquelles les molécules ont une anisotropie de forme qui leur permet, lorsque la température est relativement faible, d'avoir une orientation privilégiée sous l'effet du champ et d'augmenter ainsi fortement leur viscosité. Les solutions de cristaux liquides polymériques de grand poids moléculaire offrent une augmentation de viscosité d'un ordre de grandeur par rapport aux solutions de cristaux liquide de faible poids moléculaire. Ces fluides présentent un très grand avantage par rapport aux suspensions car ils sont dépourvus de problème de sédimentation. En contre partie les cristaux liquides ne possèdent pas de contrainte seuil et ont une gamme de fonctionnement limitée en température, ils n'offrent pas la rapidité des fluides ER conventionnels, ils sont assez coûteux et les solvants utilisés posent des problèmes de toxicité et de compatibilité avec d'autres matériaux.

Ces solutions donnent, pour des concentrations de 20 % en poids de cristaux liquides, des contraintes de l'ordre de 2 à 3 kPa pour des champs de 1 kV/mm et des taux de

cisaillement  $\dot{\gamma} = 0,1$  à  $0,5 \text{ s}^{-1}$  [Yang et Shine, 1992 - Tse et Shine, 1994]. Inoue *et al.* étudient des solutions de cristaux liquides polymériques (LCP) présentant différentes structures ramifiées dans du polydiméthylsiloxane (PDMS) (huile silicone) et ils observent une forte dépendance de l'effet ER en fonction de l'architecture du LCP [Inoue *et al.*, 1996]. La dilution dans du PDMS permet de réduire la viscosité sans champ tout en conservant un effet important lorsque le champ électrique est appliqué. Ils obtiennent pour une solution de 50% (en poids) une contrainte de 4 kPa pour un champ de 2 kV/mm et  $\dot{\gamma} = 250 \text{ s}^{-1}$ . Lacey *et al.* utilisent une solution de cristal liquide comme phase dispersante des suspensions ER. Ceci n'offre pas une forte augmentation de la contrainte seuil statique par rapport à un hydrocarbure chloré mais conduit à un renforcement de la contrainte en cisaillement (12 kPa pour 4 kV/mm et  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ ), inversement la présence de particules solides permet à ce type de fluide d'avoir une contrainte statique (3 kPa pour 2,2 kV/mm) [Lacey *et al.*, 1996].

## V.5 Les fluides ER commerciaux

Un certain nombre de sociétés impliquées dans la recherche en électrorhéologie depuis plusieurs années ont déjà commercialisé des fluides. Les principales caractéristiques de ces fluides sont données dans le tableau ci-dessous.

Fabricants	E (kV/mm)	$\dot{\gamma}$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$\tau$ (kPa)	$I_s$ ( $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ )
AFS (1)	2,7	24	4	< 15
ERF (2)	3,5	(?)	8	< 8
Bayer AG (3)	3 (50 Hz)	1000	2,1	(?)
Bayer AG (4)	3 (DC)	1000	1,8	< 10
Bridgestone (5)	3	1000	1,2	< 20
Nip. Shokubai (6)	6	(?)	3,8	< 8
Lord Corp. (7)	4 (DC)	(?)	1	< 20
Lord Corp. (8)	3 (1000 Hz)	(?)	2	1300
Lord Corp. (9)	3 (500 Hz)	(?)	3,4	(?)

(1) Advanced Fluid Systems - particules de polyméthacrylate de lithium hydratées dans une huile paraffinique partiellement chlorée (Cereclor).

(2) ER Fluid Developments - Rheflex 35/815 : particules de sels de resorcinol/formaldehyde de lithium dans une huile silicone fluorée.

- (3 - 4) Bayer AG - Rheobay : fluides ER intrinsèques basés sur des particules de sels de polyuréthane de lithium dans de l'huile silicone [Bloodworth, 1994 - Bloodworth et Wendt, 1994].
- (5) Bridgestone Corp. - fluide à base de particules carbonées [Ishino, 1994].
- (6) Nippon shokubai - TX-ER [Asako *et al.*, 1994 et 1996].
- (7 - 9) Lord Corporation - fluide ER-100 (DC) ER-200 et ER-201 (AC) [Weiss et Duclos, 1994].

## V.6 Les fluides MR

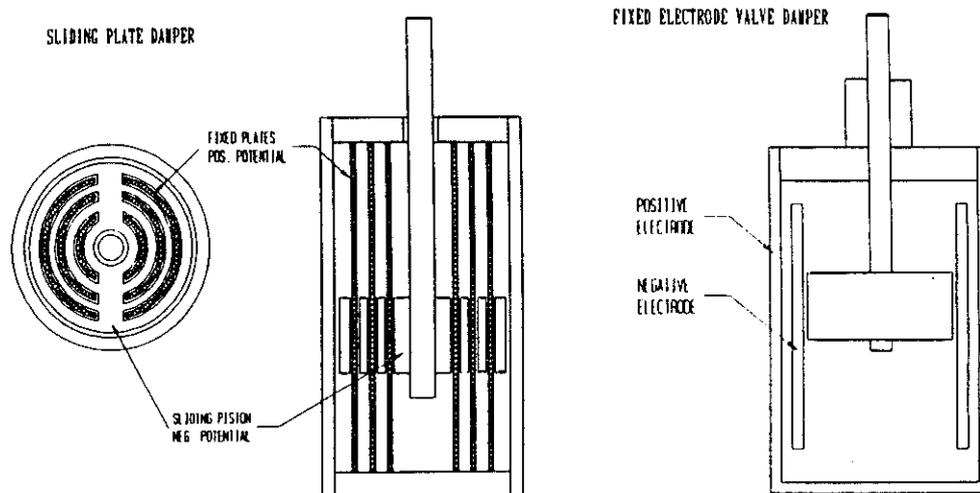
Les fluides magnétorhéologiques offrent des avantages par rapport aux fluides électrorhéologiques. Par exemple ils ne nécessitent pas un liquide porteur ayant de grandes qualités diélectriques, ce qui augmente grandement le nombre de liquides susceptibles d'être utilisés et diminue les problèmes de pollution du liquide. En contre partie les fluides MR ont une réponse moins rapide et l'effet n'est pas immédiatement réversible car il y a une relaxation de la polarisation magnétique (à cause de la présence de plusieurs domaines magnétiques dans chaque particule). Actuellement les meilleures performances des fluides MR (en terme de contrainte seuil) les rendent plus attractifs. Concernant la taille des dispositifs, il faut comparer le volume occupé par la source haute tension pour les fluides ER avec l'encombrement des bobines et leur alimentation pour les fluides MR. Ainsi, à caractéristiques rhéologiques équivalentes ( $\tau, \dot{\gamma}$ ), la consommation d'énergie d'un fluide MR ou ER est sensiblement la même [Carlson *et al.*, 1996]. Si les fluides MR offrent des contraintes seuil plus élevées, ils nécessitent cependant la création d'un champ magnétique et la mise en place de bobines d'induction pouvant poser des problèmes d'encombrement ou d'accessibilité. Dans ce cas, l'utilisation des fluides ER semble plus appropriée.

Lord Corporation propose un fluide magnétorhéologique (MR-100) qui conduit à une contrainte supérieure à 80 kPa pour  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$  et un champ H de 3000 Oersted [Weiss et Duclos, 1994].

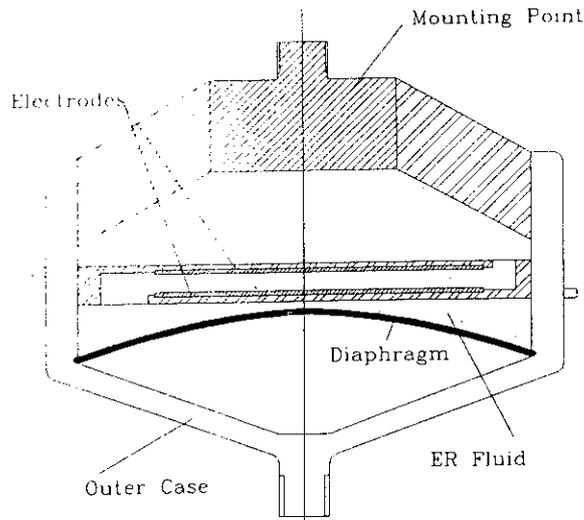
BASF commercialise un fluide magnétorhéologique constitué de particules monodomaines de 30 nm [Kormann *et al.*, 1996]. Ces particules se polarisent avec un champ magnétique plus faible que les fluides MR classiques et conduisent à de meilleurs temps de réponse (< 5 ms). Ils obtiennent 4 kPa pour  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$  et B = 0,4 T.

## Chap.VI : Les applications

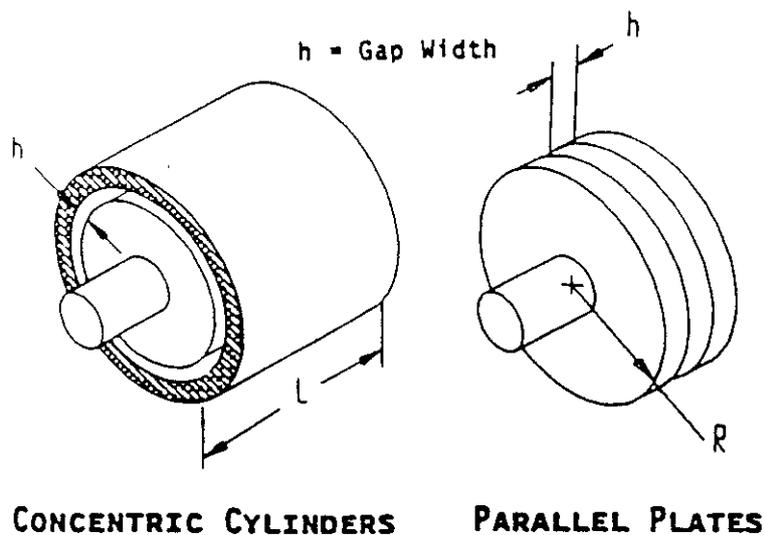
Au-delà de l'intérêt purement "académique" que présente l'étude des fluides ER, l'objectif final recherché est l'élaboration de fluides suffisamment performants pour être utilisés dans des dispositifs mécaniques. Les fluides ER, et MR, sont des matériaux adaptatifs dont les propriétés rhéologiques sont contrôlées par l'intensité du champ appliqué. L'augmentation de viscosité de ces fluides lorsqu'ils sont soumis à un champ et l'existence d'une contrainte seuil permettent d'envisager leur utilisation dans de nombreux dispositifs hydrauliques tels que : amortisseurs, vannes, embrayages, freins, actionneurs, etc... (Fig. VI.1.a-b-c).



**Figure I.VI.1.a** : Exemple d'amortisseurs : écoulement de Couette avec des plaques mobiles et écoulement de Poiseuille avec des électrodes fixes. D'après Hartsock *et al.*, 1991.



**Figure I.VI.1.b** : Schéma d'un support de moteur. D'après Brooks, 1992.



**Figure I.VI.1.c** : Embrayages à cylindres coaxiaux et à plaques parallèles. D'après Hartsock *et al.*, 1991.

Les dispositifs susceptibles d'être réalisés sont simples à construire, faciles à contrôler et rapides (temps de réponse  $\sim$  ms); leur fonctionnement est totalement réversible et leur consommation d'énergie est faible par rapport à la puissance mécanique contrôlée (environ 1 pour 100). Chaque application offre des avantages spécifiques : pour les amortisseurs, possibilité de contrôler la viscosité du fluide et donc d'amortir efficacement sur une grande gamme de fréquence; pour les vannes, suppression des parties mobiles; pour les embrayages, disparition des frottements mécaniques et donc diminution de l'usure. Une des applications les plus intéressantes est la réalisation d'amortisseur; ce dispositif permettrait de réduire considérablement les pertes énergétiques dues aux vibrations en particulier dans le secteur de

l'automobile où le nombre élevé de véhicules conduirait à des économies non négligeables (sans compter le gain de confort pour les passagers).

Actuellement, le facteur limitant le développement des dispositifs ER est leur manque de performances aussi bien sur le plan des caractéristiques mécaniques (contrainte transmissible) qu'au niveau de la stabilité du fluide. Il faut reconnaître que les caractéristiques demandées sont particulièrement contraignantes. En effet, ils doivent présenter :

- Une contrainte seuil élevée ( $> 15$  kPa pour des embrayages de voitures).
- Une viscosité sans champ la plus faible possible.
- Un temps de réponse faible.
- Une faible conductivité électrique (consommation électrique, échauffement par effet Joule).
- Un champ de claquage élevé (qq. 10 kV/mm).
- Une bonne stabilité du point de vue :
  - De la sédimentation
  - Thermique ( $-50^{\circ}\text{C}$  à  $150^{\circ}\text{C}$ ).
  - Colloïdale.
  - Chimique.
  - Mécanique (dégradation des particules).
- Des performances durables.
- Etre non abrasif et non corrosif vis-à-vis des matériaux employés dans les dispositifs.
- Un respect de l'environnement (non toxique, non polluant).
- Un faible prix.

Les applications représentent une partie importante de l'activité de recherche dans le domaine de l'électrorhéologie. De nombreuses communications sont présentées dans les conférences internationales que nous avons citées dans l'introduction de cette partie et il est possible de s'y reporter. Citons simplement quelques travaux concernant la faisabilité d'embrayages, d'amortisseurs et de supports de moteur : une étude de Duclos sur la taille et la consommation des dispositifs ainsi que la contrainte seuil statique nécessaire et une d'Hartsock *et al.* qui abordent les mêmes applications mais en anticipant sur les performances futures des fluides ER [Duclos, 1989 - Hartsock *et al.*, 1991]. Citons également une étude de Lingard *et al.* qui étudient la tribologie des fluides ER [Lingard *et al.*, 1989].

Lors de la cinquième conférence internationale sur les fluides électrorhéologiques (Sheffield, 1995) Weyenberg *et al.* (Lubrizol/RheoActive/Monroe) ont présenté les résultats d'essais effectués sur une voiture en condition d'utilisation réelle [Weyenberg *et al.*, 1996], et Nippon Shokubai a présenté une machine permettant de couper des céramiques dont la vitesse d'approche de la pièce est contrôlée par une vanne électrorhéologique.

L'effet ER peut conduire à d'autres applications plus "marginales". Par exemple Randall *et al.* utilisent l'alignement des particules sous l'effet du champ électrique pour réaliser des matériaux composites céramique-polymères [Randall *et al.*, 1993]. Tada *et al.* mettent à contribution l'effet ER pour fabriquer des vitres d'opacité variable [Tada *et al.*, 1993].

Les premiers dispositifs utilisant des fluides MR ont été commercialisés par Lord Corporation-Rheonetic Systems (amortisseurs pour sièges de voiture, vannes, amortisseurs de vibrations, freins) [Carlson *et al.*, 1996].

Il est possible de distinguer trois parties essentielles dans un système électrorhéologique : le dispositif, le fluide et le système de contrôle. Pour obtenir des systèmes ER performants il est important de développer les trois parties simultanément et en particulier la conception des dispositifs qui doit tenir compte de la nature particulière de l'effet ER. Peu d'industries ou de groupes de recherche réalisent cette condition hormis Lubrizol Corp., Lord Corp., Bridgestone et Advanced Fluid Systems.

## Conclusion

Depuis le milieu des années quatre-vingt, les fluides électrorhéologiques font l'objet de recherches importantes impliquant universitaires et industriels (principalement aux Etats-Unis, Japon, Allemagne et Angleterre). Ces fluides ne sont pas pour l'instant suffisamment performants pour pouvoir faire l'objet d'un réel développement industriel même si des progrès significatifs apparaissent ici et là. Sur ce point, les fluides magnétorhéologiques ont des caractéristiques qui les rendent souvent plus attrayants et ils ont déjà trouvé leurs premières applications. Cependant leur utilisation peut être limitée par la nécessité de devoir appliquer un champ magnétique (encombrement et consommation des bobines d'induction). Dans certains cas, les fluides ER devraient être plus intéressants à condition que leurs performances soient accrues.

Nous rappelons ci-dessous les points qui nous semblent importants en vue du développement de fluides ER performants.

Il semble évident que l'effet ER est relié aux propriétés physico-chimiques des particules, du liquide et de l'interface solide/liquide. Ces propriétés déterminent le déplacement des charges et donc la polarisation interfaciale ainsi que la conduction. Par exemple il est notable que, comme nous l'avons vu dans le chapitre matériaux, il y ait des corrélations entre l'effet ER et la température, la présence en plus ou moins grande quantité de certains ions, etc...

En ce qui concerne la structuration des particules sous l'effet d'un champ électrique, il semble bien établi que des agrégats plus ou moins épais se forment entre les électrodes, dans un contexte idéal les chaînes constituant les fibres adoptent vraisemblablement une structure bct. La formation des chaînes est rapide (quelques ms) et totalement réversible. Notons que lorsqu'un cisaillement est appliqué aux suspensions ER la structure se dégrade. Se dégrade-t-elle au niveau des électrodes ou dans le volume? La question reste encore ouverte. Mais si un cisaillement provoque dans certains cas la destruction partielle ou totale des fibres, il peut également induire une réorganisation de ces fibres qui va avoir des conséquences importantes sur les propriétés macroscopiques des fluides ER. Cette évolution de la structuration induit des phénomènes de thixotropie qui rendent la connaissance des conditions expérimentales et

du "passé" électrique et rhéologique des fluides, nécessaires si nous voulons pouvoir comparer et évaluer les caractéristiques des fluides. Il s'agit là d'une remarque générale concernant l'étude des fluides ER pour lesquels le grand nombre de paramètres, souvent corrélés, rend les conclusions difficiles. En particulier pour l'effet de la taille et de la forme des particules, s'agit-il : d'un effet de polarisation, d'un effet de taille relative particules/entrefer, d'un effet hydrodynamique (influence de la taille sur la viscosité des suspensions), ou bien d'un effet de structuration? La question reste également très ouverte.

L'estimation, à partir de modèles analytiques, de la contrainte seuil statique d'un fluide ER est délicate. Néanmoins, il semble que deux paramètres jouent un rôle essentiel : le nombre de chaînes par unité de surface (lié à la fraction volumique) et la valeur de la déformation de cisaillement pour laquelle les chaînes se brisent (ceci implique la connaissance de la structure et la façon dont elle se déforme).

Enfin sur le plan pratique n'oublions pas que le cahier des charges imposé aux fluides ER constitue un important challenge au niveau de la synthèse des matériaux. Les polymères semi-conducteurs (électroniques ou ioniques) sont probablement parmi les matériaux les plus prometteurs car leur conductivité est facilement ajustable et leur grande possibilité de synthèse permet d'envisager l'élaboration de matériaux adaptés à l'électrorhéologie (matériaux multicouches, maîtrise de la taille et de la forme, etc.).

Les problèmes rencontrés dans l'étude des fluides ER peuvent être regroupés autour de quelques axes :

- La nature de l'interaction entre particules et le rôle des propriétés physico-chimiques des constituants.
- La déformation et la rupture des fibres.
- Le rôle de la taille, de la géométrie et de la dispersion des particules.
- Les conséquences des phénomènes de thixotropie et l'effet du conditionnement préalable des fluides sur ses caractéristiques (en particulier dans les applications pratiques).

Nous allons pour notre part aborder dans la deuxième partie la détermination de l'interaction entre les particules sous l'effet d'un champ électrique continu.

# **PARTIE II**



# Introduction

Les modèles utilisés jusqu'à présent pour estimer l'attraction entre les particules des fluides électrorhéologiques, basés sur l'interaction de multipôles, considèrent les matériaux constituant les fluides ER comme étant des isolants parfaits. Ces modèles ne tiennent donc pas compte de la conductivité des particules ou de celle du liquide. Or, dans le cas des champs continus ou alternatifs à basse fréquence, ce sont les conductivités des matériaux qui déterminent la distribution du champ électrique et donc l'interaction entre les particules. Il y avait là un manque certain au niveau de la théorie concernant les fluides ER. Foulc, Félici et Atten ont proposé en 1992 un modèle décrivant l'interaction en champ continu entre deux sphères [Foulc *et al.*, 1992]. La vérification expérimentale de ce modèle ainsi que son développement font l'objet du travail que nous allons présenter.

Le point de départ de cette nouvelle approche a donc été la constatation qu'en tension continue ce sont les propriétés de conduction de la phase solide et de la phase liquide qui déterminent l'interaction entre les particules. Une approche qualitative a permis de montrer qu'une condition nécessaire à l'obtention d'un effet électrorhéologique est que la conductivité de la phase solide soit supérieure à celle de la phase liquide. Nous montrerons également qu'il existe une valeur limite pour la conductivité de la phase solide au-delà de laquelle il n'est plus possible d'obtenir un effet ER. Partant de cette constatation un modèle a été développé qui prévoit une augmentation de la force entre particules avec le rapport  $\Gamma$  des conductivités solide/liquide. Ce paramètre semble être le paramètre déterminant de l'interaction dans le cas des champs continus. Ce modèle est vérifié à l'aide d'une expérience à grande échelle constituée par des demi-sphères en polyamide de rayon  $R = 0,7$  cm immergées dans différents liquides dont nous pouvons faire varier la conductivité. L'analyse détaillée des différents phénomènes susceptibles de modifier la conduction entre les demi-sphères nous a conduit à prendre en compte la saturation du courant, les phénomènes d'injection de charges aux interfaces solide/liquide ainsi que les décharges partielles et les claquages dans le liquide.

Nous envisageons également le cas de sphères légèrement écartées, cette nouvelle configuration nous permettant d'établir un lien entre l'interaction des particules et la contrainte seuil statique d'un fluide ER.

Enfin, dans le dernier chapitre, nous abordons l'influence de la fréquence du champ électrique appliqué et le cas où les particules ont une conductivité de surface.



# Chapitre I

## Comportement de particules soumises à un champ électrique continu

Dans ce chapitre nous allons aborder d'une manière qualitative le comportement de particules soumises à un champ électrique continu. Ces observations nous permettront de déterminer les conditions que doivent vérifier les propriétés électriques des matériaux solides et liquides, en particulier la conductivité, pour obtenir un effet électrorhéologique.

### I.1 Généralités

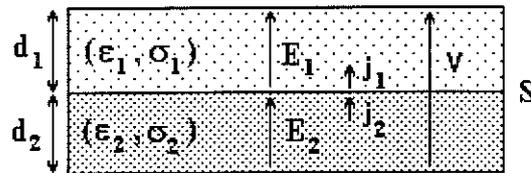
#### I.1.1 Force entre surfaces chargées :

Nous avons vu dans la première partie que l'effet ER était fréquemment relié à une polarisation interfaciale. Partant de la constatation que des charges électriques de signes contraires s'attirent il est clair que l'accumulation de charges de signe opposé à la surface de deux matériaux en regard et légèrement séparés conduit à une force d'attraction entre ces deux matériaux. C'est notamment le cas entre les armatures d'un condensateur. Dans le cas de conducteurs, la force qui s'exerce par unité de surface sur les matériaux est donnée par la pression électrostatique  $\epsilon_L E^2/2$  où E est le champ électrique au voisinage du conducteur.

Ce principe a été utilisé par Johnsen et Rahbek pour maintenir des pièces métalliques sur un support semi-conducteur à l'aide d'un champ électrique [Johnsen et Rahbek, 1923]. Plus récemment Waring décrit un système basé sur ce principe permettant de maintenir des pièces à usiner sur des rectifieuses [Waring, 1961]. Dans ce cas l'interaction se produit entre la pièce à usiner et un élément semi-conducteur, les deux éléments étant séparées par un film de résine et une couche d'huile. Ce système développé industriellement permettait d'obtenir des pressions de l'ordre de la pression atmosphérique (100 kPa). Si nous considérons que l'huile a une constante diélectrique égale à 2,2 nous obtenons, à partir de la pression électrostatique, des champs électriques de l'ordre de 100 kV/mm sur la couche d'huile.

### I.1.2 Champ continu et champ alternatif :

Nous avons dit que dans le cas des champs continus et alternatifs basses fréquences ce sont les propriétés de conduction qui déterminent la distribution du champ électrique. Pour illustrer cela, considérons deux couches planes adjacentes constituées de deux matériaux ayant chacun une permittivité ( $\epsilon_1$  et  $\epsilon_2$ ) et une conductivité ( $\sigma_1$  et  $\sigma_2$ ) (Fig. II.I.1).



**Figure II.I.1**

A l'instant zéro une tension  $V$  est appliquée sur les deux couches, cette tension va se répartir sur les deux matériaux suivant leurs caractéristiques électriques (conductivité et permittivité). A l'interface  $S$ , une densité de charge  $q_s$  apparaît et en supposant qu'un courant  $j_1$  circule à travers le matériau 1 et un courant  $j_2$  à travers le matériau 2, les équations s'écrivent :

$$\begin{aligned} V &= d_1 E_1 + d_2 E_2 \\ j_1 &= \sigma_1 \cdot E_1 \\ j_2 &= \sigma_2 \cdot E_2 \\ q_s &= \epsilon_1 \cdot E_1 - \epsilon_2 \cdot E_2 \\ \frac{\partial q_s}{\partial t} + (j_1 - j_2) &= 0 \end{aligned}$$

A  $t = 0$ ,  $q_s = 0$  et  $\epsilon_1 \cdot E_1 = \epsilon_2 \cdot E_2$ . Une fois l'équilibre atteint  $\frac{\partial q_s}{\partial t} = 0$  et  $j_1 = j_2 \Rightarrow \sigma_1 \cdot E_1 = \sigma_2 \cdot E_2$ .

La résolution pour une tension appliquée  $V(t)$  fait apparaître pour l'évolution du système une équation de la forme :

$$\frac{\partial y}{\partial t} - \frac{y}{\tau} = F(t)$$

où  $\tau$  est la constante de temps du système donnée par :

$$\tau = \frac{\epsilon_1 d_2 + \epsilon_2 d_1}{\sigma_1 d_2 + \sigma_2 d_1}$$

Dans le cas des champs continus et pour des temps  $t \gg \tau$ , l'équilibre est atteint et  $\sigma_1.E_1 = \sigma_2.E_2$ . La distribution du champ électrique est donc déterminée par les conductivités des matériaux. Pour les champs alternatifs ayant une fréquence suffisamment élevée pour que la demi-période soit très inférieure à  $\tau$ , le champ électrique est alors donné par  $\varepsilon_1.E_1 = \varepsilon_2.E_2$  et ce sont les permittivités des matériaux qui imposent la distribution du champ électrique.

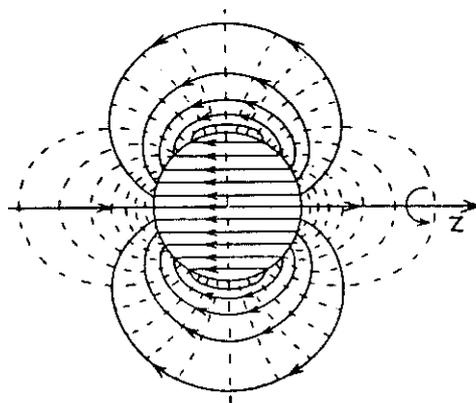
On voit également apparaître l'existence d'une fréquence de transition  $f_c$  entre le régime dominé par les permittivités et celui dominé par les conductivités telle que  $\omega_c \tau = 2\pi f_c \tau = 1$ .

Si le matériau 1 est beaucoup plus conducteur que le 2 la constante de temps devient :

$$\tau \sim \frac{\varepsilon_1}{\sigma_1}$$

### I.1.3 Polarisation d'une sphère dans un champ électrique :

Considérons une sphère solide de permittivité  $\varepsilon_s$  plongée dans un liquide de permittivité  $\varepsilon_L$  et soumise à un champ électrique  $E_0$  uniforme (Fig. II.I.2). Sous l'effet de ce champ la sphère va se polariser et un champ dépolarisant  $E'$  apparaît à l'intérieur de la sphère. A l'extérieur de la sphère, le champ créé par la polarisation est équivalent à celui d'un dipôle placé au centre de la sphère et ayant pour valeur  $P \times (\text{volume de la sphère})$ . Le champ produit par cette polarisation est équivalent à celui d'une sphère dont la distribution de charge superficielle est donnée par  $q_s = P \cos \theta$  ( $\theta$  ayant pour référence la direction du champ électrique extérieur).



**Figure II.I.2 :** Champ électrique d'une sphère polarisée. Le champ électrique extérieur est dirigé suivant l'axe des z ( $\varepsilon_s > \varepsilon_L$ ). (D'après Durand, 1964).

On montre que le champ de dépoliarisation est uniforme à l'intérieur de la sphère et qu'il est égal à :  $E' = -P/3\epsilon_L$  [Purcell, 1973]. Le champ  $E_s$  régnant à l'intérieur de la sphère est égal à la superposition du champ extérieur  $E_o$  et du champ  $E'$ . La polarisation  $P$  étant égale à  $(\epsilon_s - \epsilon_L)E_s$ , il est facile d'obtenir les relations suivantes :

$$E_s = \left( \frac{3\epsilon_L}{2\epsilon_L + \epsilon_s} \right) E_o$$

$$P = 3\epsilon_L \left( \frac{\epsilon_s - \epsilon_L}{2\epsilon_L + \epsilon_s} \right) E_o$$

Dans le cas où la sphère et le liquide ont une conductivité, l'influence d'un champ continu fait apparaître à la surface de la sphère une densité de charge  $q_s = q_{s_o} \cos\theta$  similaire à celle donnée par la polarisation on obtient dans ce cas :

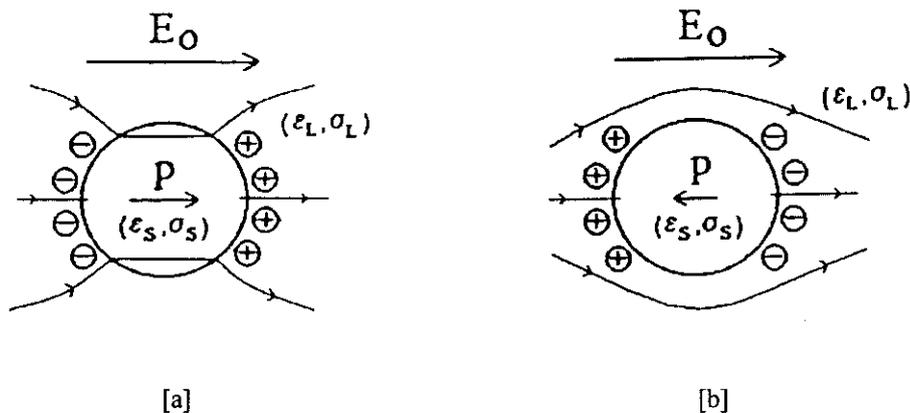
$$E_s = \left( \frac{3\sigma_L}{2\sigma_L + \sigma_s} \right) E_o$$

$$P = -3\epsilon_L E' = 3\epsilon_L \left( \frac{\sigma_s - \sigma_L}{2\sigma_L + \sigma_s} \right) E_o$$

On parle dans ce cas de polarisation interfaciale.

Pour les champs continus deux cas sont alors possibles :

- la conductivité  $\sigma_s$  du solide est supérieure à celle  $\sigma_L$  du liquide, la polarisation  $P$  est dans le sens du champ  $E_o$  et la particule concentre les lignes de champ (Fig. II.I.3.a).
- $\sigma_s$  est inférieure à  $\sigma_L$ , la polarisation est en sens inverse du champ électrique et les lignes de champ ont tendance à contourner la sphère (Fig. II.I.3.b).



**Figure II.I.3 :** Polarisation et ligne de champ autour d'une sphère : [a]  $\sigma_s > \sigma_L$ , [b]  $\sigma_s < \sigma_L$ .

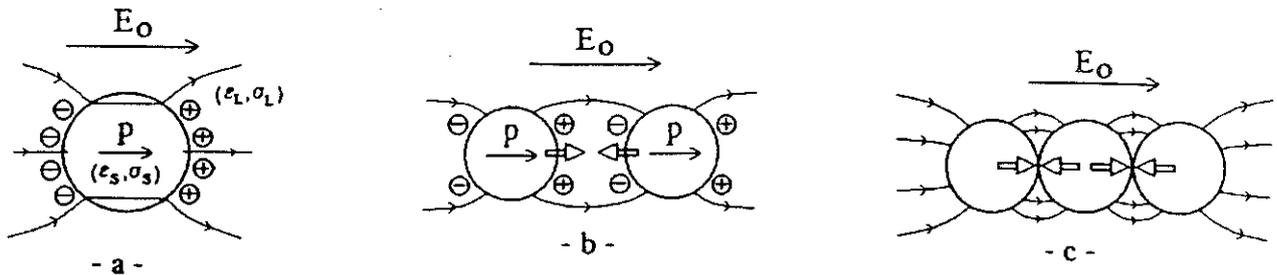
Ces deux cas de figure vont avoir des conséquences différentes au niveau de la formation des chaînes et de leur stabilité dans les fluides électrorhéologiques.

### 1.1.4 Comportement de deux sphères soumises à un champ électrique continu :

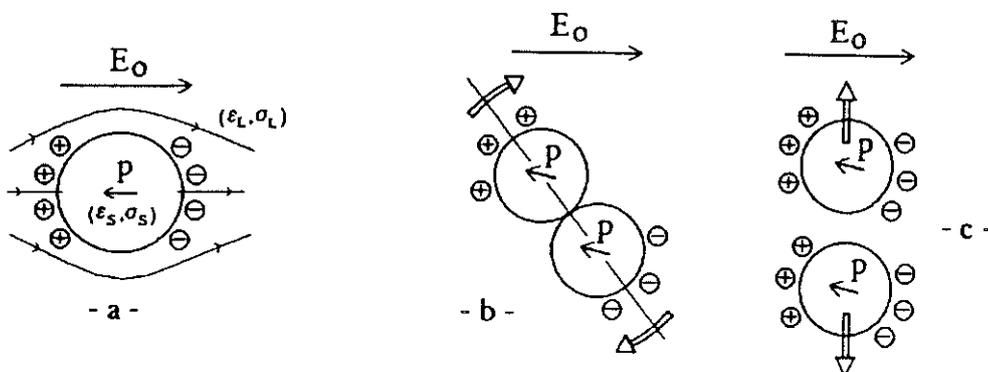
Abordons maintenant le cas où deux sphères identiques sont soumises à un champ électrique continu. Elles vont dans un premier temps se polariser puis s'attirer formant ainsi un doublet de particules, première étape de la formation des chaînes à l'origine de l'effet ER. Reprenons l'examen des deux cas de figure précédents.

-  $\sigma_s \geq \sigma_L$  : Les deux sphères s'attirent et forment alors un élément de chaîne. Le couple qu'exerce le champ sur le doublet a un effet stabilisant qui tend à aligner le doublet avec le champ électrique. Dans le cas d'un fluide ER contenant un grand nombre de particules la connexion de plusieurs doublets conduit à la formation de chaînes stables susceptibles de conduire à un effet ER (Fig. II.I.4.a).

-  $\sigma_s \leq \sigma_L$  : Dans ce cas les deux sphères vont aussi avoir tendance à se rapprocher formant ainsi un doublet dont le dipôle équivalent va avoir tendance à tourner sous l'effet du couple exercé par le champ électrique. Lorsque les charges de même signe sont en regard, les sphères se repoussent et se séparent. Il semble donc impossible dans ce cas de former des chaînes stables capables de donner un effet ER (Fig. II.I.4.b).



**Figure III.4.a :** (a) sphère isolée, (b) attraction, (c) formation de chaînes stables.



**Figure III.4.b :** (a) sphère isolée, (b) rotation, (c) répulsion  $\Rightarrow$  formation de chaînes impossible.

Ces observations qualitatives permettent donc de formuler, dans le cas où les champs électriques sont continus, une condition nécessaire à l'existence de l'effet ER : la conductivité des particules doit être supérieure à celle du liquide porteur. Néanmoins des particules très conductrices ne peuvent pas être envisagées pour réaliser un fluide ER car, d'une part elles se chargent très facilement au contact des électrodes et ont alors un mouvement de va et vient entre les électrodes, et d'autre part le courant qui circulerait à travers de telles chaînes ne permettrait pas d'appliquer des tensions élevées.

Il existe donc pour la conductivité des particules une gamme de valeur, dépendant de la nature du liquide, pour laquelle nous obtiendrons un effet ER optimum.

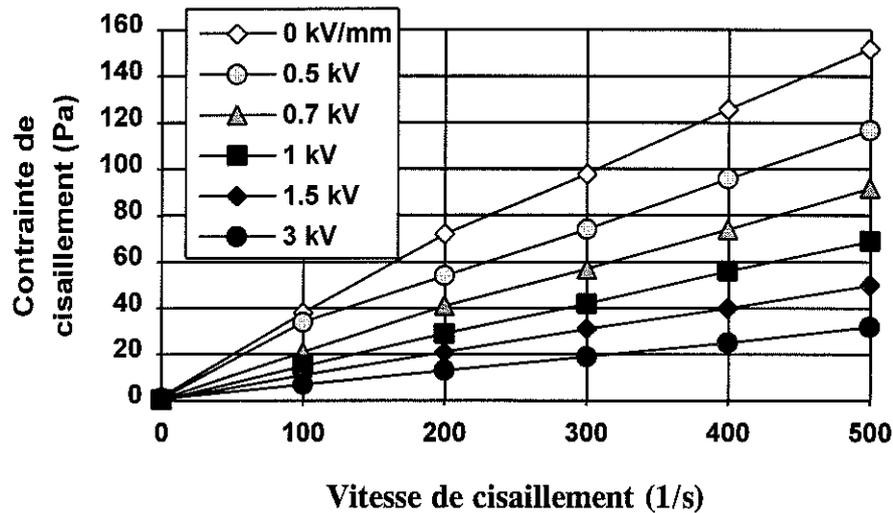
## **I.2 : Comportement des particules d'une suspension dans le cas où $\sigma_S < \sigma_L$**

Nous réalisons tout d'abord deux séries de mesures à l'aide du rhéomètre décrit dans l'annexe B. La première série utilise une suspension de particules de polyméthacrylate de méthyl (PMMA) dispersées dans un mélange d'huile de transformateur ELF-TF50 et d'un liquide diélectrique Ugilec T (ELF-ATOCHEM) afin d'avoir une densité du liquide très proche de celle des particules. Elles ont un diamètre de l'ordre de 15  $\mu\text{m}$  et un ordre de grandeur de leur conductivité est  $\sigma_S \sim 10^{-14}$  S/m, le liquide a une conductivité de  $10^{-10}$  S/m. Le deuxième fluide est composé de particules de polyéthylène (PE) dispersées dans un mélange d'huiles silicones (Rhodorsil), également pour avoir une densité du liquide proche de celle des particules. Elles ont dans ce cas un diamètre de l'ordre de 300  $\mu\text{m}$  et une conductivité de l'ordre de  $10^{-14}$  S/m. Le mélange d'huiles silicones a une conductivité de  $10^{-13}$  S/m. Dans les deux cas les particules sont déshydratées avant d'être dispersées dans le liquide et le champ électrique est appliqué avant de commencer les mesures.

Contrairement à l'effet ER, qui se traduit par une augmentation de la viscosité du fluide sous l'effet du champ électrique, on obtient dans les deux cas une diminution de la viscosité. Cet effet, qu'il est possible de qualifier d'effet "ER négatif", est illustré à l'aide des rhéogrammes obtenus avec la suspension de PMMA (Fig. II.I.5). Les rhéogrammes obtenus avec le PE sont qualitativement les mêmes mais l'effet est moins marqué.

Des observations sur des grains de polyéthylène de taille millimétrique ( $\sim 2$  mm), réalisées à l'aide d'un des dispositifs de visualisation reprenant le principe d'un rhéomètre (voir la description dans l'annexe B), ont permis de constater que sous l'effet du champ électrique ces particules subissaient un mouvement dû à l'effet électrophorétique (Fig. II.I.6). Ce phénomène d'électrophorèse a été également observé sur des particules de polystyrène (PS)

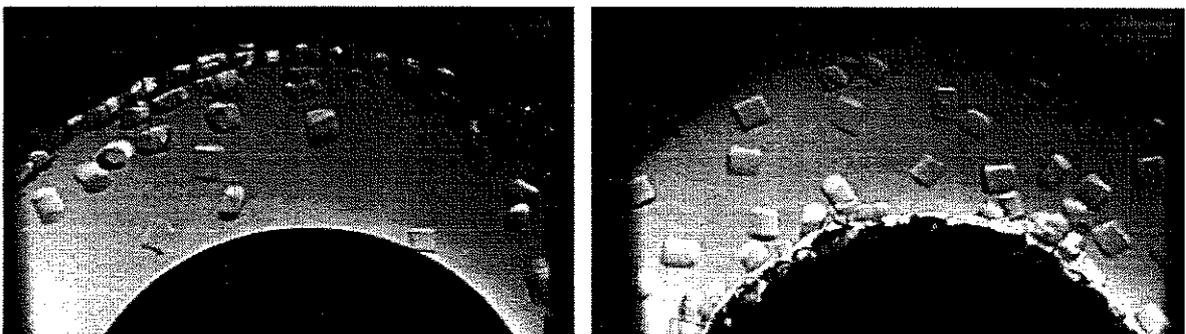
dans un mélange huile TF50 et UgilecT (Fig. II.I.7). Les grains de PS ont une taille de l'ordre 2-3  $\mu\text{m}$  et une conductivité très faible ( $\sigma_s \sim 10^{-16} \text{ S/m}$ ), le mélange de liquide a une conductivité  $\sigma_L \sim 10^{-10} \text{ S/m}$ . Remarquons que dans le cas du PE nous n'avons pas noté de rotation des particules, dans le cas du PS les particules commencent à tourner sur elles-mêmes lorsque le champ est appliqué puis se plaquent sur une électrode lorsqu'il est augmenté.



**Figure II.I.5 :** Variation de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de cisaillement pour différentes valeurs du champ électrique (PMMA, fraction volumique = 0,3).



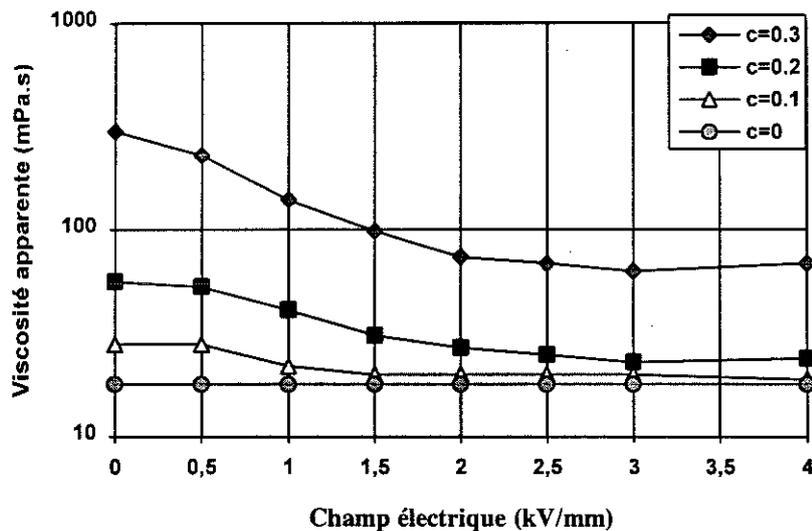
**Figure II.I.6 :** Comportement de particules de polyéthylène ( $\sigma_s \sim 2 \cdot 10^{-14} \text{ S/m}$ ) dans de l'huile silicone ( $\sigma_L \cong 10^{-13} \text{ S/m}$ ) en champ continu pour les deux polarités.



**Figure II.I.7 :** Comportement de particules de polystyrène ( $\sigma_s \sim 10^{-16} \text{ S/m}$ ) dans un mélange d'Ugilec T et de TF50 ( $\sigma_L \cong 10^{-10} \text{ S/m}$ ) en champ continu pour les deux polarités.

Ce phénomène d'électrophorèse s'explique par la présence de doubles couches autour des particules (cf. partie I). Lorsque le champ est appliqué il balaie la couche de contre-ions assurant l'électroneutralité des particules. Elles possèdent alors une charge électrique non nulle qui sous l'effet du champ électrique et de la force de Coulomb les entraîne vers une des électrodes. Dans le cas des mesures réalisées à l'aide du rhéomètre les particules se plaquent sur un des cylindres laissant ainsi une couche de liquide "pur" dans laquelle le cisaillement est plus facile. Il est donc normal d'observer une diminution de la contrainte. Ceci explique également le phénomène de saturation observé dans l'évolution de la viscosité apparente en fonction du champ électrique (Fig. II.I.8). Lorsque les particules sont suffisamment plaquées sur une électrode pour que les forces hydrodynamiques ne les arrachent pas, une augmentation supplémentaire du champ électrique ne vient pas modifier l'épaisseur de la couche liquide et donc la viscosité apparente de la suspension.

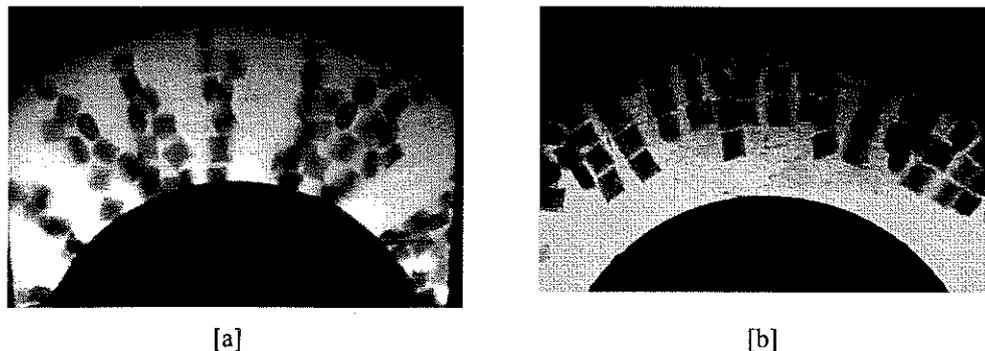
Le fait que les résultats obtenus avec le PE soient moins probants provient de la taille importante des particules de PE (300  $\mu\text{m}$ ) par rapport à la taille de l'entrefer utilisé (1 mm). Il est dans ce cas uniquement possible d'introduire 3 ou 4 particules dans l'entrefer. La séparation solide/liquide est alors beaucoup moins évidente que dans le cas du PMMA (15  $\mu\text{m}$ ).



**Figure II.I.8** : Dépendance de la viscosité apparente en fonction du champ électrique pour différentes valeurs de la fraction volumique (PMMA/Ugilec-TF50).

Il est possible également de vérifier que la condition  $\sigma_s > \sigma_L$  est nécessaire à l'obtention d'un effet ER en champ continu en utilisant des grains de polyamide (PA). Ces grains ont eux aussi une taille de 2-3 mm et une conductivité  $\sigma_s \sim 1,7 \cdot 10^{-8}$  S/m. Cette conductivité provient de la présence de plastifiant dans le polymère. Plongées dans un mélange de TF50 et d'Ugilec T de conductivité  $\sigma_L \sim 10^{-10}$  S/m, ces particules s'alignent entre les deux électrodes et forment des fibres (Fig. II.I.9.a). Lorsque du sel d'AOT (di-2-éthylhexyl

sulfosuccinate de sodium) est ajouté au liquide de telle sorte que sa conductivité devienne égale à  $2.10^{-7}$  S/m, les particules se déplacent lentement vers l'électrode extérieure quelle que soit la polarité du champ (Fig. II.I.9.b). Ce mouvement lent n'a rien à voir avec l'effet ER mais est plutôt induit par un effet diélectrophorétique dû au fait que l'on est en présence d'un champ non uniforme. Lorsque ces mêmes particules sont placées entre deux électrodes planes parallèles, elles tournent sur elles-mêmes. La différence de comportement entre les particules de PE et PS et celles de PA provient certainement du fait que dans le premier cas les conductivités des matériaux sont très faibles, il n'y a donc pas beaucoup de charges en mouvement susceptibles de donner une polarisation interfaciale importante, le phénomène de double couche est alors prédominant. Dans le second cas les conductivités sont plus importantes et l'effet électrophorétique dû à la double couche est sûrement masqué par le phénomène de diélectrophorèse dû à la polarisation interfaciale.



**Figure II.I.9** : Comportement de grains de polyamide ( $\sigma_s \cong 1.7 \cdot 10^{-8}$  S/m) dans un mélange TF50/UgilecT : a)  $\sigma_L \cong 10^{-10}$  S/m; b) avec de l'AOT :  $\sigma_L \cong 2 \cdot 10^{-7}$  S/m (le comportement est le même pour les deux polarités).

Il est possible de trouver des indices confirmant ce type de comportement à travers la littérature. Randall *et al.* observent une déposition systématique sur une des électrodes lorsqu'ils utilisent des particules dont la résistivité est importante telles que : de la silice, de l'alumine, du dioxyde de titane, du titanate de barium, de strontium et de bismuth [Randall *et al.*, 1994]. Block *et al.* observent que l'effet ER obtenu avec du poly(p-terphenylquinone) (PTQR) de conductivité  $\sigma_s \sim 5.10^{-11}$  S/cm dans de l'huile silicone est très faible [Block *et al.*, 1992]. Dans le même ordre d'idée Matsepuro et Kordonsky observent que, lorsque la conductivité de leur suspension est faible, l'effet ER est également faible et ils constatent que l'effet ER apparaît quand le pourcentage d'eau est suffisant pour que les particules échangent des charges [Matsepuro et Kordonsky, 1992]. D'autre part un examen de la littérature et des brevets fait apparaître que dans la plupart des cas les matériaux constituant la phase solide sont plus conducteurs que ceux constituant la phase liquide.

Il semble donc que la condition  $\sigma_s > \sigma_L$  est une condition nécessaire à l'obtention de l'effet électrorhéologique en tension continue.

### I.3 : Conductivité maximale des particules

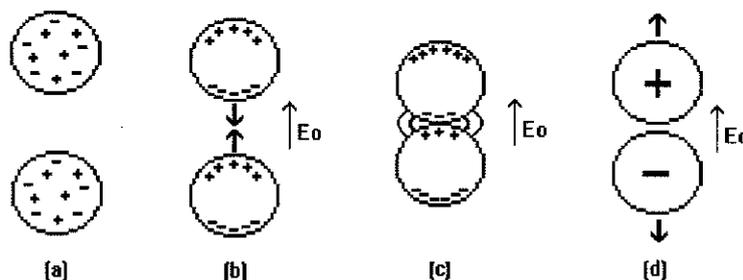
Deux possibilités s'offrent à nous pour obtenir un rapport des conductivités élevé : soit diminuer la conductivité du liquide  $\sigma_L$ , soit augmenter la conductivité du solide. Diminuer la conductivité du liquide n'est possible, si l'on tient compte des conditions pratiques, que jusqu'à des valeurs de  $10^{-13}$  S/m avec des liquides tels que des hydrocarbures ou des huiles silicones qui ont des constantes diélectriques variant entre 2 et 2,6. Les liquides ayant des constantes diélectriques plus importantes ont également des conductivités plus élevées ( $\sigma_L \sim 10^{-10}$  S/m pour  $\epsilon_L \sim 5$ ) à cause de leur plus grand pouvoir dissociant. Nous avons donc là une borne inférieure pour la conductivité du liquide et nous voyons que nous sommes assez loin des liquides parfaitement isolants tels qu'ils sont souvent considérés dans la littérature. Inversement il semble possible d'augmenter grandement la conductivité des particules solides mais on se heurte alors à deux problèmes. Premièrement il est bien connu que les particules très conductrices (par exemple métalliques) se chargent au contact d'une électrode et prennent une charge du même signe que l'électrode. Sous certaines conditions elles sont alors entraînées par le champ électrique jusqu'à l'électrode opposée où elles se déchargent, puis se rechargent de nouveau. Elles ont alors un mouvement de va et vient entre les électrodes. Deuxièmement dans un fluide ER le courant passe essentiellement par les fibres de particules. Il faut donc veiller à ce que les particules ne soient pas trop conductrices pour éviter une trop grande consommation d'énergie et un échauffement trop rapide du fluide.

Ce que nous avons dit concernant l'échange de charges entre une particule et une électrode est également valable entre deux particules. Ce phénomène, évoqué par Anderson, est illustré sur la figure II.I.10 [Anderson, 1992]. Deux particules isolées sont polarisées sous l'effet du champ électrique, elles s'attirent puis, lorsqu'elles sont suffisamment proches pour qu'un courant puisse circuler à travers le liquide, elles échangent leurs charges jusqu'à ce que la distribution soit telle qu'elles se séparent. Nous pouvons donc avoir une vue schématique de ce qui peut se produire lors de la formation des chaînes dans le cas d'un fluide ER (Fig. II.I.11). Les particules initialement dispersées (a) se polarisent sous l'effet du champ électrique, s'attirent et entrent en contact (2-3 et 4-5), certaines avec les électrodes (1). Si le temps de formation des chaînes est inférieur au temps d'échange des charges, la chaîne a le temps de se former, le courant circulant alors à travers les particules maintient les distributions de charges superficielles en regard, ce qui assure la stabilité de la chaîne (c). Par contre, si les particules se séparent avant que la chaîne ait eu le temps de se former totalement (d), il semble difficile d'avoir des chaînes stables et donc d'obtenir un effet ER important.

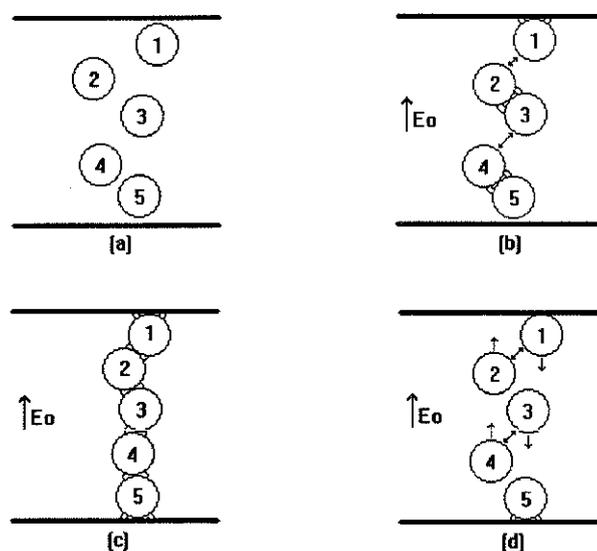
Le temps caractéristique d'échange des charges entre deux particules en contact peut être estimé par [Félici, communication personnelle] :

$$\tau \approx 10 \text{ à } 20 \frac{\epsilon_L}{\sigma_S}$$

où  $\epsilon_L$  intervient dans la détermination de la densité de charges présente à l'interface solide/liquide.



**Figure II.I.10** : Comportement de deux sphères légèrement conductrices soumises à un champ électrique.



**Figure II.I.11** : Comportement d'un groupe de sphères légèrement conductrices entre deux électrodes et soumises à un champ électrique. [a] Elles sont dispersées dans le liquide en l'absence de champ. [b] Elles s'attirent ou sont attirées par les électrodes lorsque le champ est appliqué. [c] Les chaînes ont le temps de se former avant que les particules se séparent. [d] Les particules se séparent avant la formation des chaînes.

Si nous estimons le temps de formation des chaînes comme étant le temps de rapprochement de deux particules, nous obtenons :

$$t_{ch} \approx \frac{\eta}{\epsilon_L \cdot E_o^2}$$

ce qui donne, pour  $E_o = 1 \text{ kV/mm}$ ,  $\epsilon_L = 2,2\epsilon_o$  et  $\eta = 2 \cdot 10^{-2} \text{ Pa.s}$  :  $t_{ch} \sim 1 \text{ ms}$ . En égalant les deux relations nous trouvons une conductivité limite  $\sigma_{max}$  égale à :

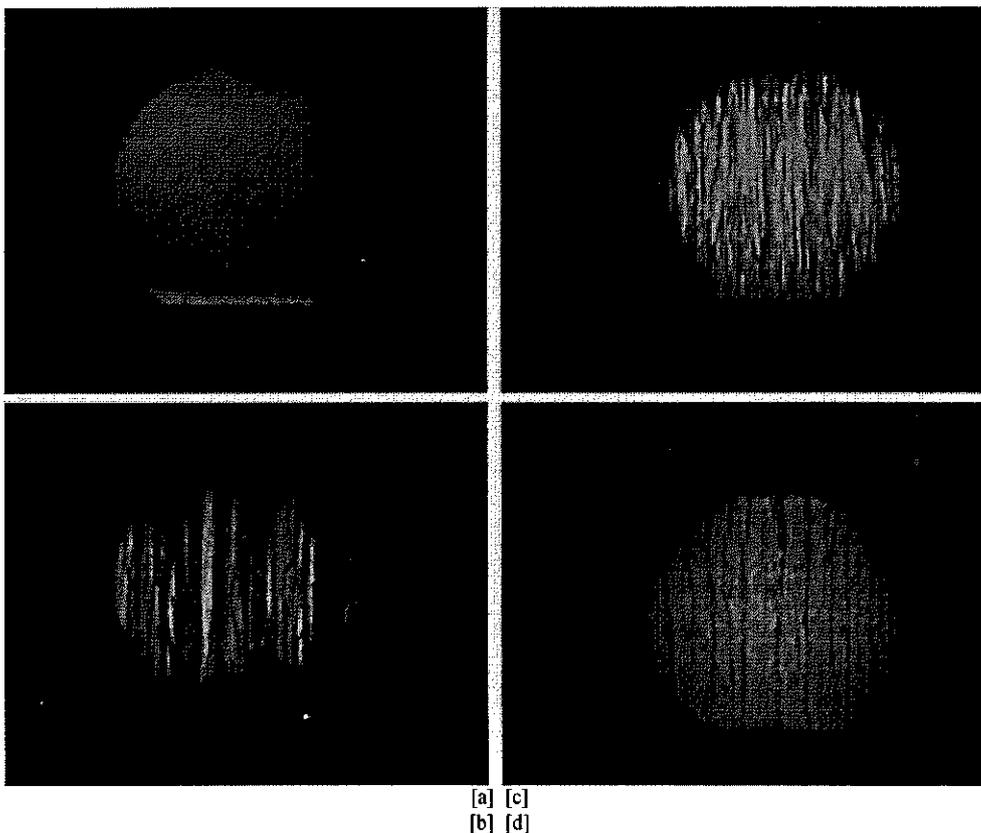
$$\sigma_{max} \cong 10^{-7} \text{ S/m}$$

Nous pouvons noter que le temps de formation des chaînes fait intervenir le champ électrique. Il faudra donc un champ électrique minimum, variable suivant la valeur de  $\sigma_s$ , pour obtenir des chaînes stables.

## I.4 : Comportement d'une suspension en fonction de $\sigma_S$

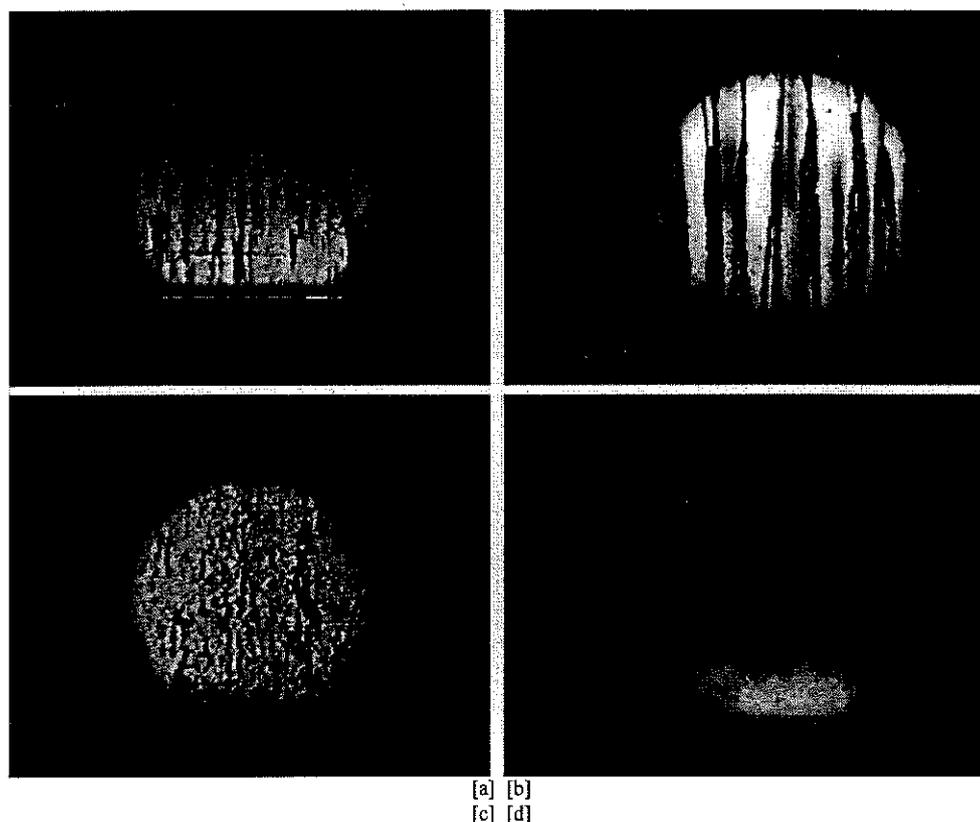
Après ces deux premières remarque nous pouvons examiner le comportement d'un fluide ER dilué en fonction de la conductivité des particules. Le dispositif utilisé est celui décrit dans l'annexe B et les particules sont de la cellulose avec différents taux d'humidité et de la polyaniline ayant des taux de dopage différents (Fig. II.I.12 et II.I.13).

La figure 12.a correspond à la cellulose séchée dispersée dans de l'huile TF50 dont la conductivité a été augmentée à l'aide d'AOT de telle sorte que ( $\sigma_S < \sigma_L$ ). Nous observons un phénomène d'électrophorèse qui se traduit par l'apparition d'une zone claire au niveau de l'électrode inférieure (si nous inversons la polarité, la zone claire apparaît en haut). Pour la figure 12.b, la cellulose contient environ 5% d'eau en poids et  $\sigma_S > \sigma_L$ ; des fibres épaisses et stables se forment. Pour la cellulose nettement plus humide (nous n'avons pas mesuré sa conductivité ni sa teneur en eau) les particules ont tendance à former des chaînes mais ces chaînes restent partielles et vont et viennent entre les électrodes (Fig. 12.c). Dans le cas 12.d nous avons  $\sigma_S \sim 10^{-4}$  S/m et la quantité d'eau est d'environ 14%. Les particules ne forment plus de chaîne excepté sur les parois des hublots en Plexiglas, mais ces chaînes sont très instables.



**Figure II.I.12** : Comportement de la cellulose dans l'huile TF50 ( $\sigma_L \cong 10^{-12}$  S/m) : [a]  $\sigma_S < \sigma_L$  : les particules vont vers l'électrode supérieure. [b]  $\sigma_S \cong 10^{-9}$  S/m les particules forment des chaînes stables. [c] Les particules sont plus humides et des chaînes partielles vont et viennent entre les électrodes. [d] La teneur en eau est encore plus importante et il n'y a plus formation des chaînes.

Dans le cas de la polyaniline nous observons le même comportement avec toutefois une différence car, quand  $\sigma_s$  est très grand, il semble qu'il y ait également un phénomène d'électrophorèse.



**Figure II.I.13** : Comportement de particules de polyaniline dans l'huile TF50 ( $\sigma_L \cong 10^{-12}$  S/m) : [a]  $\sigma_S < \sigma_L$  les particules sont attirées par l'électrode supérieure. [b]  $\sigma_S \cong qq. 10^{-6}$  S/m les particules forment des chaînes stables. [c]  $\sigma_S \cong 5.10^{-5}$  S/m les chaînes partielles vont et viennent entre les électrodes. [d]  $\sigma_S \cong 10^{-4}$  S/m il n'y a plus formation des chaînes.

L'existence d'un maximum de l'effet ER en fonction de la conductivité des particules est confirmée par certaines observations expérimentales rapportées dans la littérature. Tout d'abord nous considérons les fluides ER qui nécessitent la présence d'eau ou de surfactant pour donner un effet ER notable en partant de l'hypothèse que, plus le pourcentage d'additif est important, plus les particules sont conductrices. Nous devons également remarquer que certaines des mesures sont effectuées avec des tensions alternatives, souvent 50-60 Hz. Dans ce cas nous sommes loin des conditions que nous avons considérées jusqu'à présent, à savoir une tension continue, néanmoins ces fréquences restant faibles il est fort probable que les temps de relaxations soient tels que la conduction joue encore un rôle prépondérant et que le comportement en fonction de la conductivité des particules soit le reflet de ce qui se passerait en tension continue. Enfin il faut noter que lorsque la conductivité des particules augmente, la résistance du fluide ER diminue et il est plus difficile d'appliquer une tension élevée entre les électrodes. Il est donc possible d'appliquer une tension constante au niveau de l'alimentation sans pour autant qu'elle se retrouve complètement au niveau des électrodes, une chute de

tension importante pouvant se produire dans les résistances de protection si la résistance équivalente du fluide ER tend vers la valeur des résistances de protection. Mais nous avons fait l'hypothèse que les expérimentateurs auront veillé à compenser ce phénomène afin d'avoir réellement la tension appliquée sur le fluide ER.

Une des premières études en fonction de la teneur en eau des particules a été réalisée sur de la cellulose [Uejima, 1972]. Un maximum de la viscosité relative du fluide ER est obtenu pour des teneurs entre 7 et 12 %. Deinega et Vinogradov rapportent également un maximum de l'effet ER en fonction de la teneur en eau, la teneur correspondant au maximum variant en fonction du champ électrique appliqué [Deinega et Vinogradov, 1984]. Remarquons qu'ils obtiennent également une évolution de la contrainte seuil en fonction de la température; comme nous savons que la conductivité de ces systèmes est très dépendante de la température ceci paraît normal. Cette tendance est universelle et se retrouve également avec des matériaux contenant des surfactants à la place de l'eau [Matsepuro et Kordonsky, 1992 - Chen et Conrad, 1993 - Kim et Klingenberg, 1994.a et b]. Stipanovic et Schoonmaker étudient le comportement de particules dérivées de polysaccharide en fonction de la teneur en eau et notent un maximum pour une teneur de 20%. Cette valeur, plus importante que celles obtenues avec de la cellulose, les amène à suggérer que, dans leur cas, l'eau est beaucoup plus liée que dans le cas de la cellulose et de l'amidon [Stipanovic et Schoonmaker, 1994].

Pour des matériaux intrinsèques des résultats similaires sont rapportés. Block *et al.* obtiennent un maximum de l'effet ER sur des dérivés de poly(acenequinones) correspondant à une conductivité de l'ordre de  $10^{-5}$  S/m pour des fractions volumiques de 35% [Block *et al.*, 1990]. Xu *et al.* utilisent des polymères semi-conducteurs à base de polyacrylonitrile et obtiennent un maximum de l'effet ER pour des conductivités de l'ordre de  $10^{-4}$ - $10^{-5}$  S/m [Xu *et al.*, 1992 - Hao et Xu, 1996]. Ils rapportent également que des particules de carbone ayant une bonne conductivité ne produisent aucun effet notable [Xu et Liang, 1991].

En conclusion nous pouvons affirmer que si la conductivité des particules est supérieure à quelques  $10^{-5}$  S/m il n'est pas possible d'avoir un effet électrorhéologique important. La différence obtenue entre l'estimation et les observations pratiques peut s'expliquer par le fait que les particules n'ont généralement pas la forme parfaitement sphérique que nous avons considérée. De plus le temps de une milliseconde correspondant au temps durant lequel les particules échangent des charges avant que la fibre soit formée n'est qu'un ordre de grandeur.

Si nous voulons que le courant qui circule dans les fluides ER soit inférieur à quelques  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$  et si nous considérons qu'il passe uniquement à travers les fibres, nous pouvons estimer une valeur maximale de la conductivité des particules. Par exemple pour  $j = 10 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ ,  $E = 3 \text{ kV}/\text{mm}$ ,  $\phi = 30\%$ , nous trouvons  $\sigma_m \cong 10^{-7}$  S/m. Enfin si nous voulons

avoir une importante polarisation interfaciale il faut que les particules soient beaucoup plus conductrices que le liquide ( $10^2$  à  $10^3$  fois plus).

Cela nous amène donc à établir qu'une condition pour obtenir un effet ER notable en champ continu est que la conductivité apparente des particules solides vérifie la relation suivante :

$$(10^2 \text{ à } 10^3) \sigma_L \leq \sigma_S \leq 10^{-7} - 10^{-5} \text{ S / m}$$

Dans le cas des fluides réels où les fibres sont constamment cassées et reformées, le passage du courant est perturbé et il est dépendant du taux de cisaillement [Foucault *et al.*, 1996]. Dans ce cas, si les fibres ne sont pas complètes, elles devraient au bout d'un certain temps se détacher de l'électrode. Néanmoins les contacts fréquents entre chaînes partielles peuvent très bien assurer le transfert de charges et ainsi assurer leur stabilité.



# Chapitre II

## Les bases du modèle de conduction

Nous abordons le problème de l'estimation de l'interaction entre deux sphères soumises à un champ continu dans le cas où elles ont une conductivité plus importante que celle du liquide. La présentation que nous allons donner dans ce chapitre est en partie qualitative mais nous allons voir qu'elle permet de déterminer des lois de variation qui sont vérifiées sur une expérience à grande échelle ainsi que, par certains aspects, sur des fluides ER réels. Nous rappellerons que lorsque les champs appliqués sont faibles la force d'interaction doit varier suivant le carré du champ tandis que pour les champs forts la variation se fait linéairement. La force d'interaction pour un champ donné est déterminée par le rapport  $\Gamma$  des conductivités solide/liquide. Notre approche est basée sur un modèle à deux zones qui fournit une loi universelle, pour un matériau solide donné, de la variation de la force en fonction de la tension appliquée et du courant qui circule à travers les sphères.

### II.1 Estimation de la force entre deux demi-sphères

Nous avons vu dans la première partie que le modèle de polarisation décrivant l'interaction entre les particules d'un fluide ER était basé sur l'interaction entre des dipôles. Nous avons souligné que dans le cas de particules conductrices ce modèle était uniquement applicable lorsqu'elles étaient suffisamment éloignées. Dans le cas des champs électriques continus, où ce sont les propriétés de conduction qui sont le paramètre prédominant et où la polarisation est interfaciale, l'interaction entre deux particules sphériques beaucoup plus conductrices que le liquide est celle de deux dipôles à condition qu'elles soient séparées par une distance  $s$  importante (supérieure à leur rayon). Dans ce cas la force peut s'exprimer par [Atten, 1993] :

$$F = 24\pi R^2 \epsilon_L E_0^2 \left( \frac{R}{2R+s} \right)^4$$

Dans le cas où la distance  $s$  est suffisamment faible on ne peut plus assimiler les sphères à des dipôles simples et le calcul de la force d'interaction devient alors complexe [Klingenberg, 1988 - Chen *et al.*, 1991 - Bonnecaze et Brady 1992.a et 1992.b - Clercx et Bossis, 1993]. Cependant nous pouvons calculer facilement la force d'interaction en considérant les sphères comme équipotentielles. Pour cela considérons deux demi-sphères de rayon  $R$ , séparées d'une distance  $s$  et telles que la différence de potentiel entre les plans passant par leur centre soit  $U$  (Fig. II.II.1). Cette configuration correspond, pour des raisons de symétrie, au cas rencontré dans les fluides électrorhéologiques pour une chaîne de particules équidistantes. Si  $E_0$  désigne le champ appliqué au fluide,  $U = (2R + s)E_0$  et si nous faisons l'approximation de considérer que les lignes de champ sont orientées suivant  $Oy$  (ce qui est assez bien vérifié dans le cas des fluides ER où la proximité d'autres chaînes de particules redresse les lignes de champ suivant  $Oy$ ), le champ électrique entre les sphères est alors donné par :

$$E \cong \frac{U}{y+s} = \frac{(2R+s)E_0}{y+s}$$

où  $(y + s)$  est la distance entre la surface des sphères. En considérant la pression électrostatique nous pouvons écrire que la composante suivant  $Oy$  de la force sur un anneau élémentaire de surface  $2\pi x R d\theta$  est :

$$dF = \frac{\epsilon_L E^2}{2} 2\pi x R d\theta \cos\theta$$

En assimilant la demi-sphère au parabolôide osculateur de révolution, la distance  $y$  peut être approximée par  $x^2/R$  (cette approximation est particulièrement vraie dans la zone proche de  $x = 0$  et est justifiée car nous verrons que la contribution majeure à la force d'interaction provient de cette zone), en intégrant entre  $x = 0$  ( $\theta = 0$ ) et  $x = R$  et en considérant que  $dx = R d\theta \cos\theta$  nous obtenons [Atten *et al.*, 1996] :

$$F \cong \frac{\pi \epsilon_L U^2 R}{2s} = 2\pi R^2 \epsilon_L E_0^2 \left[1 + \frac{s}{2R}\right]^2 \frac{R}{s} \quad (1)$$

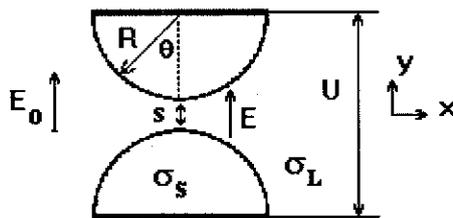


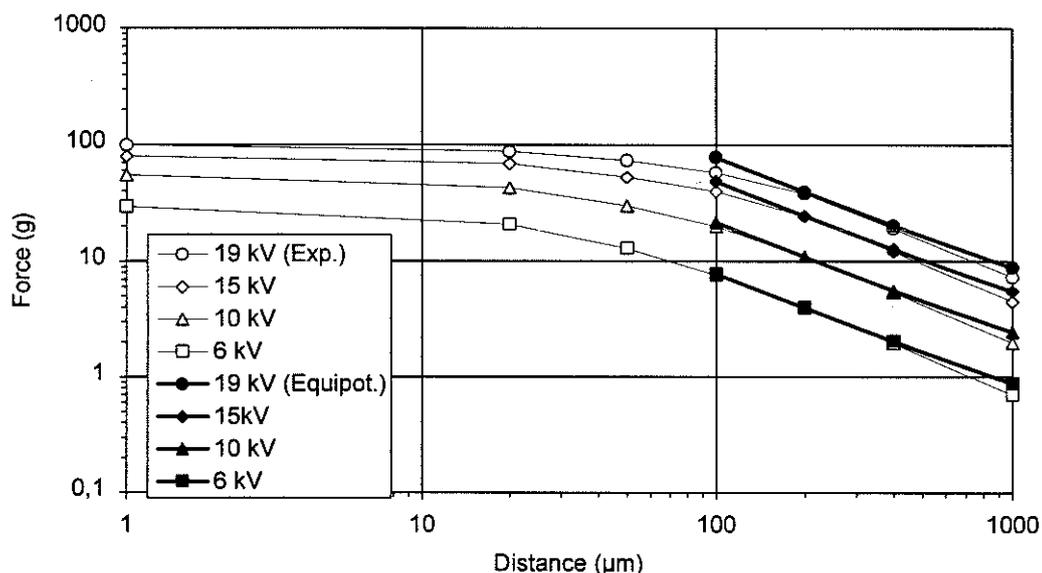
Figure II.II.1 :

Nous devons donc avoir pour les distances  $s$  faibles une variation de la force en  $1/s$ . Ceci implique que la force doit diverger lorsque les particules viennent en contact, ce qui n'est pas envisageable. La relation que nous venons de donner n'est donc pas valable pour les distances très faibles et il nous faut reprendre notre approche. En particulier si les deux demi-sphères sont beaucoup plus conductrices que le liquide, le champ électrique entre les deux sphères au niveau de l'axe reliant les deux centres est égal à :

$$E \cong \left(1 + \frac{2R}{s}\right) E_0$$

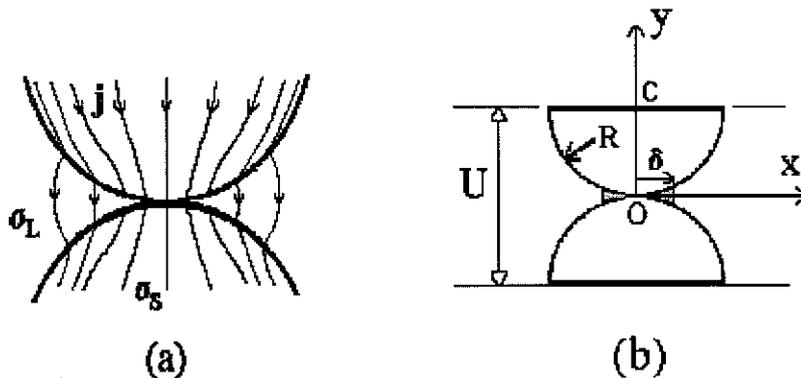
Lorsque les deux demi-sphères se rapprochent la distance  $s \rightarrow 0$  et  $E \rightarrow \infty$ ; la force d'attraction devient donc infinie. Le fait que le champ électrique  $E$  devient infini est physiquement impossible, des claquages survenant alors dans le liquide. En fait lorsque le champ électrique appliqué aux liquides non polaires devient important, il peut augmenter très fortement la dissociation d'espèces électrolytiques et par conséquent la conductivité du liquide; il peut également provoquer des phénomènes d'injection aux interfaces solide/liquide. Cette augmentation locale de la conductivité du liquide limite, en pratique, le champ électrique.

Considérons l'allure générale de la variation de la force d'interaction en fonction de la distance entre deux demi-sphères de polyamide de rayon  $R = 0,7$  cm plongées dans une huile minérale. La valeur de la force pour  $s = 0$  est représentée sur l'axe des ordonnées ( $x = 1 \mu\text{m}$ ) et le détail des mesures sera abordé par la suite. Pour des distances supérieures à  $200 \mu\text{m}$  la force varie suivant une puissance  $-1$  en fonction de la distance (Fig. II.II.2) et les valeurs sont en très bon accord avec celles données par la relation (1). Les deux hypothèses que nous avons faites (expressions de  $E$  et de  $y$ ) sont donc justifiées. Nous constatons effectivement que la force ne diverge pas lorsque les sphères viennent en contact mais qu'au contraire elle sature.



**Figure II.II.2 :** Variation de la force en fonction de la distance entre des demi-sphères de polyamide dans de l'huile minérale.

Considérons maintenant deux sphères en contact (Fig. II.II.3). Loin du point de contact les sphères sont équipotentielles et concentrent les lignes de courant; très peu de courant passe dans le liquide. Près du point contact la concentration des lignes de courant dans les sphères provoque une forte augmentation de la densité de courant, ce qui se traduit par une chute de potentiel dans le solide. Parallèlement il y a une forte augmentation du champ sur le liquide et de sa conduction : une grande partie des lignes de courant quitte la sphère et passe dans le liquide.



**Figure II.II.3 :** (a) Lignes de courant à l'intérieur des sphères et à travers le liquide. (b) Définition des notations.

La première hypothèse fondamentale à la base de tous les développements ultérieurs consiste à distinguer schématiquement deux zones : une première zone, pour  $x > \delta$ , où le potentiel de la surface de chaque sphère est considéré comme constant et égal à celui de son centre  $U(C)$ ; une deuxième zone, pour  $x < \delta$  que nous appellerons zone de contact, où le champ dans le liquide prend de très fortes valeurs et où la conductance du volume de liquide augmente. Le potentiel de la surface de chaque sphère passe alors d'une valeur proche de  $U(C)$  en  $x = \delta$  à la valeur  $U(0)$  au point de contact.

En faisant l'hypothèse simplificatrice que la distribution du potentiel dans la zone de contact est de la forme  $V \cong Ux^2/\delta^2$  et en considérant que  $y \cong x^2/R$ , ceci nous donne un champ électrique constant dans la zone de contact ( $E \cong RU/\delta^2$ ). Dans le cas où les champs électriques sont importants plusieurs hypothèses conduisent au même résultat. Premièrement le champ dans le liquide ne peut pas augmenter au-delà d'un champ correspondant au claquage de ce liquide. D'autre part, quel que soit le mécanisme de création des porteurs de charges, à champ suffisamment élevé la variation de la conductivité équivalente du liquide se fait généralement suivant une loi exponentielle; il n'est pas envisageable que la conductivité du liquide augmente de plusieurs ordres de grandeurs à l'intérieur de la zone de contact (en tout cas pas au-delà de la conductivité du solide) ce qui entraîne donc que les variations du champ ne doivent pas être très importantes. La valeur limite du champ va très certainement dépendre de la valeur du rapport  $\Gamma$  des conductivités.

- Calcul pour  $x > \delta$  : Le champ électrique entre les deux demi-sphères est approché par  $U/y$ , avec  $y$  la distance entre les surfaces des deux demi-sphères et  $U = 2RE_0$  (cette relation est valable dans le cas d'une chaîne de particules entre deux électrodes où  $E_0$  est le champ moyen et  $U$  la différence de potentiel entre les centres des sphères). La distance  $y$  pour des  $x$  petits peut être approximée par :  $y \cong x^2/R$ . L'erreur commise pour les  $y$  proches de  $R$  n'a qu'une très faible incidence puisque l'essentiel de la force d'interaction entre les deux demi-sphères provient de la partie proche de la zone de contact ( $dF_1$  varie en  $1/x^3$ ). Considérant la force par unité de surface  $\epsilon_L E^2/2$  (nous négligeons ici la valeur du champ électrique à l'intérieur des sphères), la force d'attraction entre les deux demi-sphères pour un anneau situé entre  $x$  et  $x+dx$  s'écrit:

$$dF_1 \cong (2\pi x dx) \frac{\epsilon_L}{2} \frac{U^2 R^2}{x^4} = \pi \epsilon_L U^2 R^2 \frac{dx}{x^3}$$

En intégrant entre  $x = \delta$  et  $x = R$  et en considérant que  $\delta^2 \ll R^2$ , ceci nous donne :

$$F_1 \cong \frac{\pi}{2} \epsilon_L U^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

- Calcul pour  $x < \delta$  : Nous prenons ici l'hypothèse que le champ électrique entre les demi-sphères est constant pour  $x < \delta$  et égal à sa valeur en  $x = \delta$ , soit  $E_\delta \cong RU/\delta^2$ , ce champ est noté  $E_{\max}$  [Foulc *et al.*, 1992]. La surface de la zone de contact étant égale à  $\pi\delta^2$  elle donne la contribution suivante à l'interaction entre les demi-sphères :

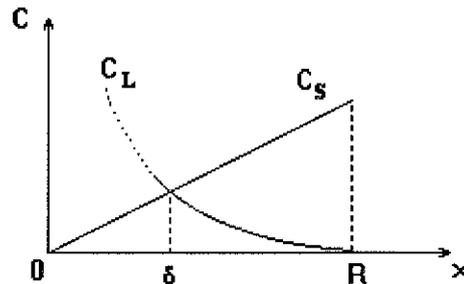
$$F_2 \cong \pi\delta^2 \frac{\epsilon_L}{2} E_{\max}^2 = \frac{\pi}{2} \epsilon_L U^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

La force d'interaction peut donc être estimée par :

$$F = F_1 + F_2 \cong \pi \epsilon_L U^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2 = 4\pi R^2 \epsilon_L E_0^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2 \quad (2)$$

L'étape suivante consiste à trouver une expression de la valeur de  $\delta$ . Pour les  $x > \delta$  le courant passe essentiellement dans la sphère car la résistance offerte par celle-ci est plus faible que la résistance du liquide. Par contre pour  $x < \delta$  la résistance du liquide devient plus faible

que celle de la sphère. Nous pouvons considérer que  $\delta$  est la valeur de  $x$  pour laquelle la résistance de la sphère est égale à celle du liquide [Foulc *et al.*, 1993]. Pour plus de facilité nous allons raisonner avec les conductances (inverse de la résistance) [Fig. II.II.4].



**Figure II.II.4 :** Variation suivant  $x$  de la conductance de la sphère et du liquide.

Avec le schéma retenu nous pouvons assimiler la conductance d'une demi-sphère à celle d'un disque de rayon  $\delta$ . A partir de l'expression donnant la capacité d'un disque conducteur de rayon  $r$  ( $C = 8\pi\epsilon r$ ) [Durand, 1964] nous obtenons [Atten *et al.*, 1994] :

$$C'_S = 4 \cdot \sigma_S \cdot \delta$$

où  $\sigma_S$  est la conductivité du solide. Pour les deux demi-sphères en série nous avons donc :

$$C_S = 2 \cdot \sigma_S \cdot \delta$$

Cette valeur est obtenue lorsque l'on prend en considération la totalité d'un demi-espace limité par le plan dans lequel se trouve ce disque. Dans notre cas nous n'avons pas un demi-espace mais un domaine plus restreint correspondant à la demi-sphère au-dessus du disque. On peut donc s'attendre à avoir dans la pratique un coefficient  $\alpha$  qui peut être déterminé expérimentalement à partir du courant circulant dans les sphères; ceci nous conduit alors à :

$$C_S = \alpha \cdot \sigma_S \cdot \delta$$

Pour le liquide, la conductance du volume compris entre les cylindres circulaires de rayons  $x$  et  $x+dx$  est égale à :

$$dC_L \cong 2\pi\sigma_L \frac{x \cdot dx}{y} \cong 2\pi\sigma_L R \frac{dx}{x}$$

L'intégration entre  $x = \delta$  et  $x = R$  dépend alors de la variation de  $\sigma_L$  en fonction du champ  $E$ . On peut distinguer deux cas asymptotiques : premièrement le champ électrique  $E_0$  est faible et pour  $x > \delta$  la conductivité du liquide reste constante; deuxièmement le champ électrique est important et la conduction du liquide dépend de  $E$  quel que soit  $x$ . L'augmentation de la conductivité du liquide sous l'effet du champ électrique a été étudiée par Onsager et nous l'aborderons plus en détail dans le chapitre III [Onsager, 1934].

### **II.1.1 Cas des champs faibles :**

L'intégration entre  $x = \delta$  et  $x = R$  avec  $\sigma_L$  constant donne :

$$C_L = 2\pi R \sigma_L \ln\left(\frac{R}{\delta}\right)$$

En égalant  $C_S$  et  $C_L$  nous obtenons une relation nous permettant de déterminer  $\delta$  :

$$\left(\frac{R}{\delta}\right) \ln\left(\frac{R}{\delta}\right) = \frac{\alpha \sigma_s}{2\pi \sigma_L} = \frac{\alpha \Gamma}{2\pi}$$

Il est possible de considérer que les variations de  $\ln(R/\delta)$  sont faibles devant celles de  $R/\delta$  et en posant  $K_\Gamma = \left[\frac{2\pi}{\alpha} \ln(R/\delta)\right]^{-1}$  nous obtenons pour la force :

$$F \cong \pi \varepsilon_L U^2 \left(\frac{R}{\delta}\right)^2 = 4\pi R^2 \varepsilon_L K_\Gamma^2 \Gamma^2 E_0^2 \quad (3)$$

La force varie donc suivant le carré du champ appliqué et suivant le carré du rapport des conductivités  $\Gamma$ . Remarquons également que si la conductivité du liquide est importante les lignes de courant quittent la sphère loin du point de contact, les valeurs du champ électrique restent faibles et l'augmentation de la dissociation sous l'effet du champ peut être négligée. La conductivité du liquide va donc rester constante.

Une estimation des valeurs limites du champ, dépendant de  $\Gamma$ , pour lesquelles ce modèle est applicable peut être obtenue en considérant que la conductivité du liquide ne doit pas être notablement augmentée, en particulier dans la zone de contact. La loi de Onsager fait intervenir un champ critique  $E_c$  et si nous considérons que la limite correspond au cas où le champ est tel que la conductivité du liquide devient égale à deux fois sa conductivité à champ faible [ $\sigma_L(E) = 2\sigma_L(0)$ ]. L'expression de Onsager (cf. chapitre III) nous donne une valeur

pour le champ limite qui est de l'ordre de  $12E_C$ . Nous obtenons alors pour le champ de transition  $E_t$  :

$$12E_C = E_\delta \approx \frac{UR}{\delta^2} = 2E_t \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

nous avons d'autre part :

$$\frac{R}{\delta} \approx \Gamma K_\Gamma$$

nous pouvons alors avancer que le champ de transition  $E_t$  est :

$$E_t \approx \frac{6E_C}{\Gamma^2 K_\Gamma^2}$$

En anticipant sur les valeurs de  $\alpha$  et  $E_C$  qui seront données dans le chapitre suivant nous pouvons estimer que le champ de transition est d'environ 0,5 kV/mm pour un rapport  $\Gamma$  de 10 et de l'ordre de 50 V/mm pour un rapport  $\Gamma$  de 100. Ces valeurs indicatives nous montrent que dans le cas des fluides ER où les champs sont supérieurs à 1 kV/mm nous ne devrions pas nous trouver dans ce cas de figure (champ faible) car les rapports de conductivités sont de toute façon très souvent supérieurs à 100. Néanmoins sur notre expérience à grande échelle où la distance inter-électrode est de 14 mm nous devrions observer cette zone (cf. paragraphe suivant).

### **II.1.2 Cas des champs forts :**

Nous faisons comme précédemment l'hypothèse que le champ dans la zone de contact est constant et égal à  $E_{\max}$ ; nous avons alors :

$$E_{\max} = E_\delta \approx \frac{UR}{\delta^2} = 2E_o \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

ceci conduit à une expression de la force donnée par [Foulc *et al.*, 1992] :

$$F = 2\pi\epsilon_L R^2 E_o E_{\max} \quad (4)$$

Dans le cas des champs faibles  $\delta$  ne dépendait pas de  $E_o$  et donc  $E_{\max}$  était proportionnel à  $E_o$ ; la force variait alors quadratiquement avec  $E_o$ . Dans le cas des champs forts la variation de la force en fonction du champ va dépendre de la variation de  $E_{\max}$ .

Pour avoir une idée de la façon dont  $E_{\max}$  peut dépendre de  $E_o$  et de  $\Gamma$ , nous pouvons avancer l'idée que le champ maximal dans la zone de contact sera tel que la conductivité

effective du liquide soit de l'ordre de grandeur de celle du solide (pour le détail des relations voir le chapitre suivant). Nous avons donc :

$$\sigma_S \sim \sigma_L(0) \sqrt{f(E/E_c)}$$

la fonction  $f(x)$  donnée par la théorie de Onsager, a pour expression asymptotique pour les champs élevés :

$$f(E/E_c) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{\exp(\sqrt{E/E_c})}{(E/E_c)^{3/4}}$$

nous avons donc :

$$\left(\frac{\sigma_S}{\sigma_L}\right)^2 \sim \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \frac{\exp(\sqrt{E_{\max}/E_c})}{(E_{\max}/E_c)^{3/4}}$$

ce qui nous donne pour  $E_{\max}$  :

$$E_{\max} \cong E_c \left\{ \ln \left[ \Gamma^2 \left( \frac{E_{\max}}{E_c} \right)^{3/4} \left( \frac{\pi}{2} \right)^{1/2} \right] \right\}^2$$

Dans le cas des champs forts  $E_{\max}$  est donc indépendant de  $E_0$  et la force va donc varier linéairement avec le champ électrique appliqué. Nous verrons par la suite qu'une telle loi linéaire est observée dans les expériences sur des demi-sphères. La valeur de  $E_{\max}$  dépend de  $\Gamma$  mais la variation est logarithmique. Contrairement au cas des champs faibles, où la variation est quadratique et où l'on attend une augmentation importante de la force avec le rapport des conductivités, nous ne devons pas attendre un gain important à partir d'une certaine valeur de  $\Gamma$ . Les valeurs de  $E_{\max}$  pour des  $\Gamma > 1000$  sont de l'ordre de quelques dizaines de kV/mm.

Une autre conséquence du concept des deux zones est de fournir une relation entre la force d'attraction entre deux sphères et le courant passant par ces sphères. En effet à partir de l'expression de la force :

$$F \cong \pi \epsilon_L U^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

et de la conductance des sphères ( $I_S = U(C_S + C_L)$  et  $C_S = C_L$ ) :

$$C_S = \frac{I_S}{2U} = \alpha \sigma_S \delta$$

on obtient en éliminant  $\delta$  :

$$F \cong 4\pi \epsilon_L R^2 (\alpha \sigma_S)^2 \left( \frac{U^2}{I_S} \right)^2 \quad (5)$$

La relation (5) est indépendante du mécanisme précis de conduction dans le liquide. Elle est uniquement basée sur l'hypothèse de la zone de contact et elle constitue le test le plus probant de la validité de notre modèle à deux zones.

En résumé nous devons nous attendre à ce que la variation de la force se fasse suivant le carré du champ électrique pour des champs faibles et des rapports de conductivité suffisamment faibles, et linéairement avec le champ pour des valeurs de champs élevées. La variation de la force en fonction du rapport des conductivités devrait être rapide pour les  $\Gamma$  faibles (variation quadratique) puis très faible pour les  $\Gamma$  très élevés (variation logarithmique). Le champ de transition entre le domaine de variation quadratique et le domaine de variation linéaire est proportionnel à  $[\ln(\Gamma^2/\Gamma)]^2$  et va donc diminuer quand  $\Gamma$  va augmenter. Enfin la variation de la force suivant  $(U^2/I_s)$ , où  $I_s$  est le courant circulant dans les sphères, doit être quadratique ce qui démontrera que la modèle basé sur la zone de contact est valable.

## II.2 Etude expérimentale

Nous allons maintenant tester les prédictions qualitatives de notre approche sur une expérience à grande échelle. Le dispositif utilisé, plus amplement décrit dans l'annexe B, est constitué de deux demi-sphères immergées dans un liquide. Les plans diamétraux de ces demi-sphères sont métallisés et l'une d'entre elles est fixée sur l'électrode inférieure portée à la haute tension. La seconde, suspendue verticalement à une balance par l'intermédiaire d'un ressort est reliée à la masse. Le principe de la mesure est le suivant : les demi-sphères sont amenées en contact puis la tension est appliquée, la demi-sphère inférieure est alors lentement descendue et tant que la force de rappel du ressort est plus faible que la force d'interaction entre les demi-sphères, celles-ci restent en contact; au-delà elles se séparent. La valeur de la force d'interaction entre les demi-sphères est lue sur la balance juste avant la séparation. Nous effectuons également la mesure du courant  $I_s$  qui circule dans les demi-sphères.

Pour réaliser ces mesures nous disposons de plusieurs couples de demi-sphères ( $R = 0,7$  cm) réalisées en polyamide (la façon dont les demi-sphères sont fabriquées est également décrite dans l'annexe B). Le nom commercial de ce polymère est L2128 et il nous a été fourni par la société Hüls. Dans la suite du texte il sera fait référence à ce polymère par "L2128". Ce polyamide contient une quantité importante de plastifiant ( $\cong 25\%$ ) et sa conductivité est environ  $1,7 \cdot 10^{-8}$  S/m. Les mesures sont effectuées en utilisant comme phase liquide une huile de transformateur (TF50-Elf), des huiles silicones ayant des viscosités différentes (Rhodorsil) et des liquides diélectriques (Jarylec et Ugilec fournis par la société Elf-Atochem). Dans chaque cas un surfactant ionique, l'AOT est ajouté afin de faire varier le

rapport  $\Gamma$  des conductivités. Ce surfactant a la particularité de ne pas produire d'injections notables à partir d'électrodes métalliques. Nous évoquerons également des mesures effectuées sur un autre polymère, le L2124, dont la teneur en plastifiant est plus faible et dont la conductivité est de l'ordre de  $10^{-9}$  S/m.

Le rapport  $\Gamma$  est déterminé à partir de la mesure de la conductivité du liquide mesurée directement dans la cellule. La mesure est effectuée entre les électrodes planes parallèles, après un délai d'au moins 12h après le remplissage et en vérifiant que le courant est ohmique sur une gamme de tension de 100 V à quelques kV. Ceci s'applique à l'ensemble des mesures présentées dans ce chapitre.

### **II.2.1 Reproductibilité des mesures :**

Le fait que la force d'attraction soit due à des phénomènes électrostatiques et le fait que la taille des sphères soit importante rendent les mesures délicates. En effet l'interaction devient très sensible à la présence de particules qui ont tendance à venir dans la zone de contact, zone la plus importante; la moindre perturbation de la conduction du liquide dans cette zone provoquant une diminution de l'interaction et la séparation des sphères. La taille importante des demi-sphères implique que lorsqu'elles sont remises en contact, la zone où elles se touchent n'est pas forcément toujours exactement la même. La sensibilité de l'interaction à un léger espacement des deux demi-sphères, susceptible de diminuer l'interaction et donc d'induire une séparation encore plus importante due à la force de rappel du ressort, rend également délicates les mesures. La reproductibilité des mesures dans de telles conditions est donc un point délicat. La première constatation est que, pour un point de mesure, la valeur retenue correspond en général à la moyenne sur quelques essais (3 à 5) et l'écart est de  $\pm 10\%$  (pour des forces suffisamment élevées  $> 10$  g).

Afin de pouvoir utiliser différents liquides, dont certains avec de l'AOT, nous avons dû réaliser plusieurs couples de demi-sphères L2128. Ces différents couples ont été testés dans de l'huile silicone 47V50 (Rhodorsil de viscosité cinématique 50 cSt). Les valeurs du rapport  $\Gamma$  des conductivités varient entre 30000 et 243000 (Tableau II.II.1). Un commentaire s'impose à propos des valeurs très disparates obtenues pour le rapport  $\Gamma$ . Ces écarts importants doivent en fait être relativisés; en effet à ces niveaux de conductivité la présence d'impuretés joue un rôle important et la manipulation des huiles devient délicate. La présence lors de ces mesures d'un socle en Téflon, ayant auparavant été mis en présence de sels d'AOT, a rendu difficile le contrôle de la conductivité du liquide; le Téflon absorbe une partie des sels présents dans le liquide et peut ensuite les restituer (ce socle a été par la suite remplacé par un socle en acier inoxydable).

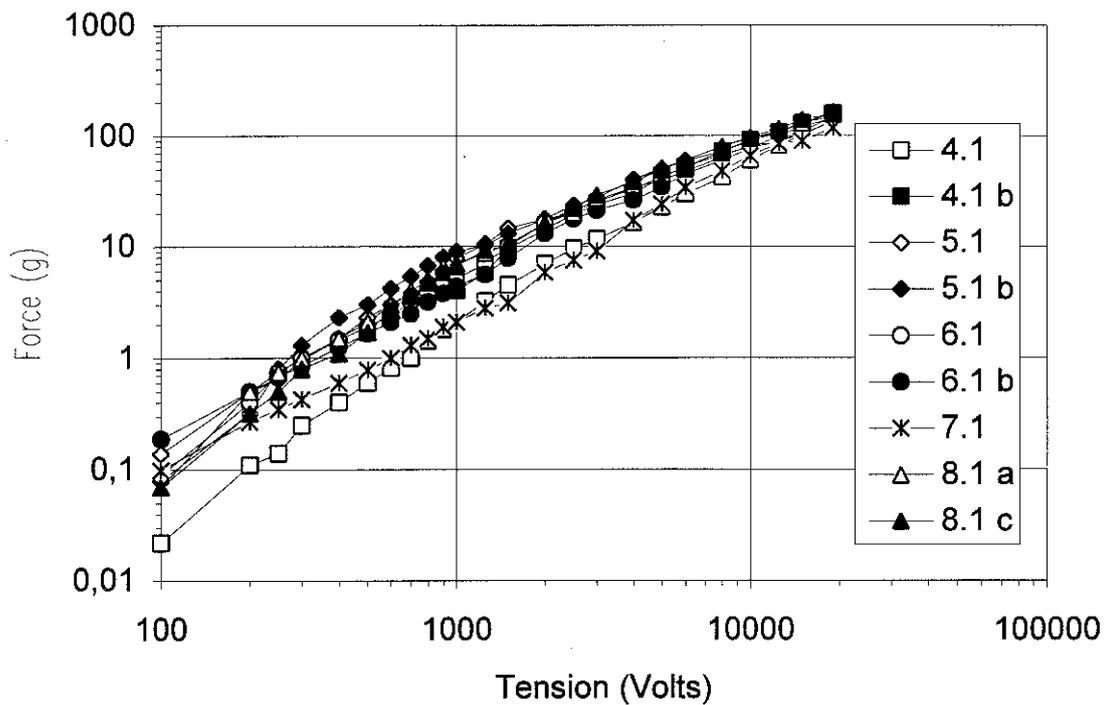
Couples	4.1	4.1.b	5.1	5.1.b	6.1	6.1.b	7.1	8.1	8.1.c
$\sigma_L$	$3,5 \cdot 10^{-13}$	$2 \cdot 10^{-13}$	$3,2 \cdot 10^{-13}$	$3,2 \cdot 10^{-13}$	$6 \cdot 10^{-13}$	$6 \cdot 10^{-13}$	$2 \cdot 10^{-13}$	$3,5 \cdot 10^{-13}$	$7 \cdot 10^{-13}$
$\Gamma$	48600	85000	53100	53100	28300	28300	85000	48600	243000

**Tableau II.II.1** : Valeurs du rapport  $\Gamma$  des conductivités. La conductivité du liquide est mesurée dans la cellule.

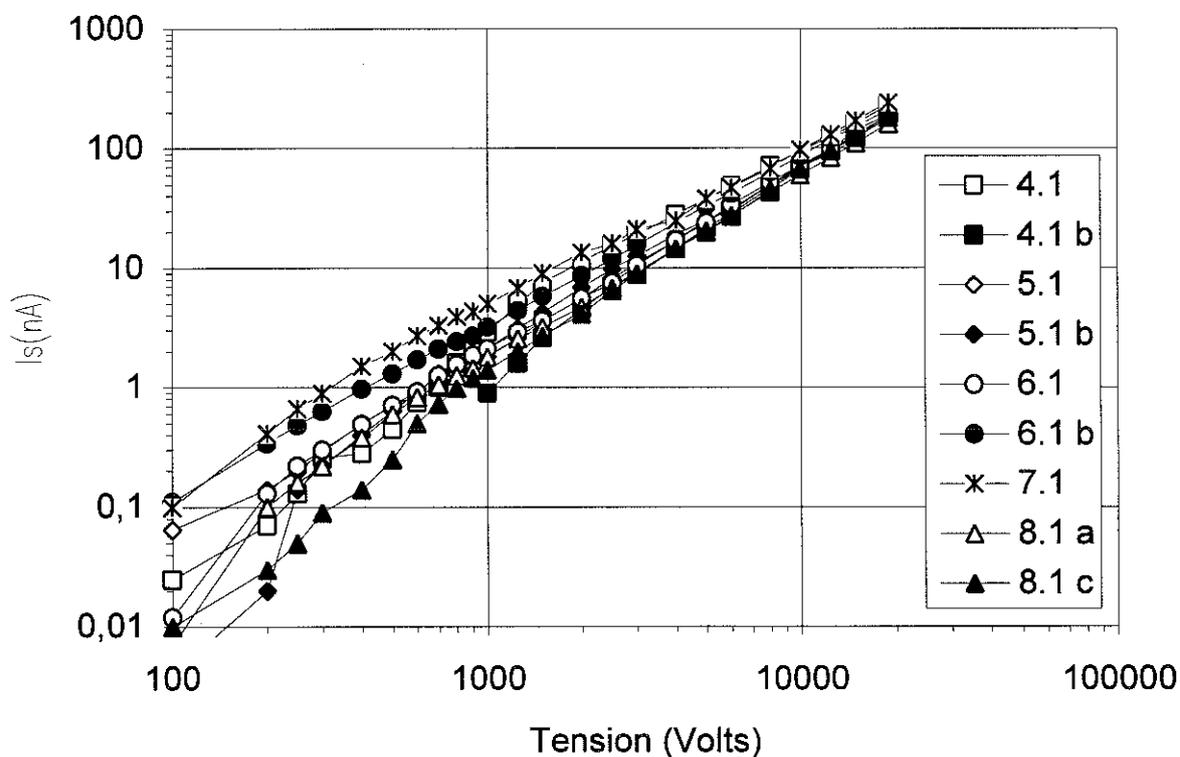
Les résultats sont présentés sur les figures II.II.5 et II.II.6. Le premier chiffre de la légende correspond au couple de demi-sphères, le second à la mesure effectuée avec ce couple, plusieurs séries de mesures étant effectuées dans l'huile 47V50 (a,b,c,...). Nous constatons qu'il y a une assez forte dispersion à champ faible, puis, lorsque le champ augmente, cette dispersion tend à diminuer. La dispersion à champ faible est certainement due à la sensibilité de la mesure lorsque les forces sont faibles. Si nous regardons en échelle linéaire la force (Fig. II.II.7) nous pouvons constater que, hormis les courbes correspondant à 6.1 et 7.1 qui subissent un net décrochage, l'écart est de l'ordre de  $\pm 10\%$ . Pour le courant l'écart est plus important et se situe autour de  $\pm 20\%$  (Fig. II.II.8).

Cette série de mesures nous permet de tester la reproductibilité de nos mesures à la fois sur différents couples de demi-sphères mais également sur une série de mesures dans le même liquide. Les écarts que nous observons peuvent être en partie dus à la différence de rapport  $\Gamma$  entre les différentes mesures. Si nous regardons la figure II.II.9 où est représentée la variation de la force pour différentes tensions en fonction de  $\Gamma$ , nous constatons une très légère augmentation lorsque  $\Gamma$  augmente (variation que l'on peut attribuer à la variation en  $\ln(\Gamma)$  du champ maximal dans la zone de contact).

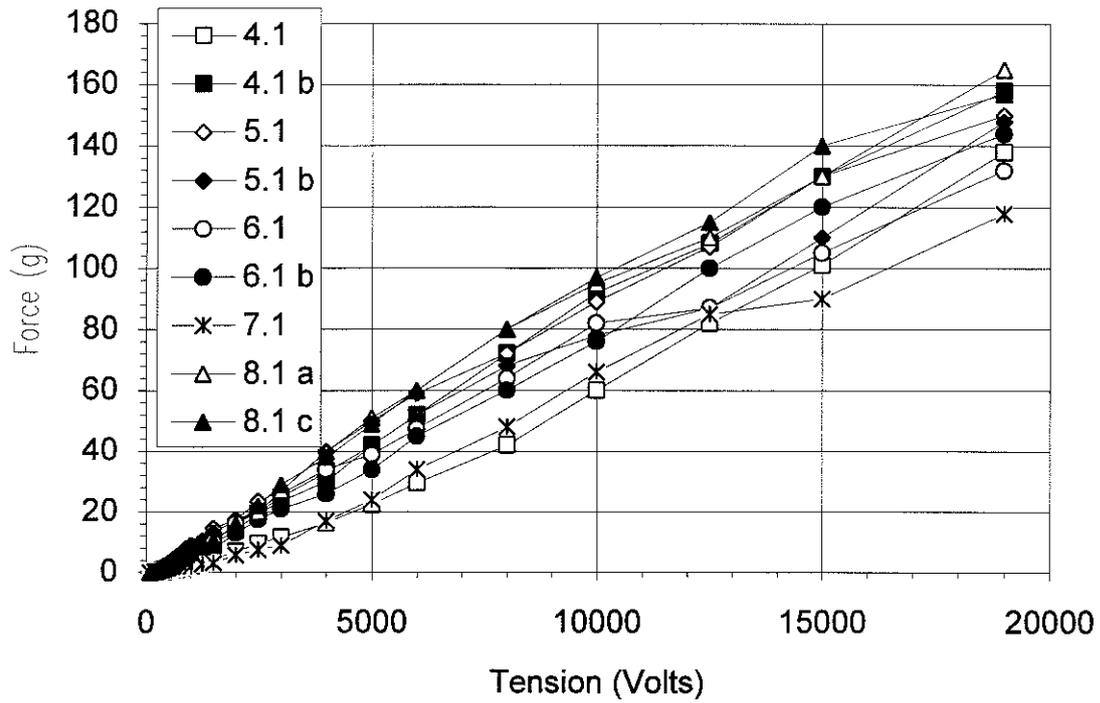
Nous pouvons conclure qu'il n'y a pas de différence notable de comportement entre les différents couples et que les mesures sont reproductibles lors d'un renouvellement du liquide (dans la mesure où le rapport  $\Gamma$  reste constant). Pour une même mesure nous avons dit que l'écart en ce qui concerne la force était de  $\pm 10\%$ , il en est de même pour le courant. Les résultats que nous présentons par la suite ne représentent qu'une partie des mesures que nous avons effectuées. En effet la difficulté que nous avons eue pour maîtriser  $\Gamma$  et la sensibilité de l'interaction à des paramètres tels que les vibrations, les particules solides présentes dans le liquide, etc., ont fait que certaines mesures ne s'inscrivant visiblement pas dans la tendance globale ou présentant de brusques changements dans leur variations avec la tension ont été écartées.



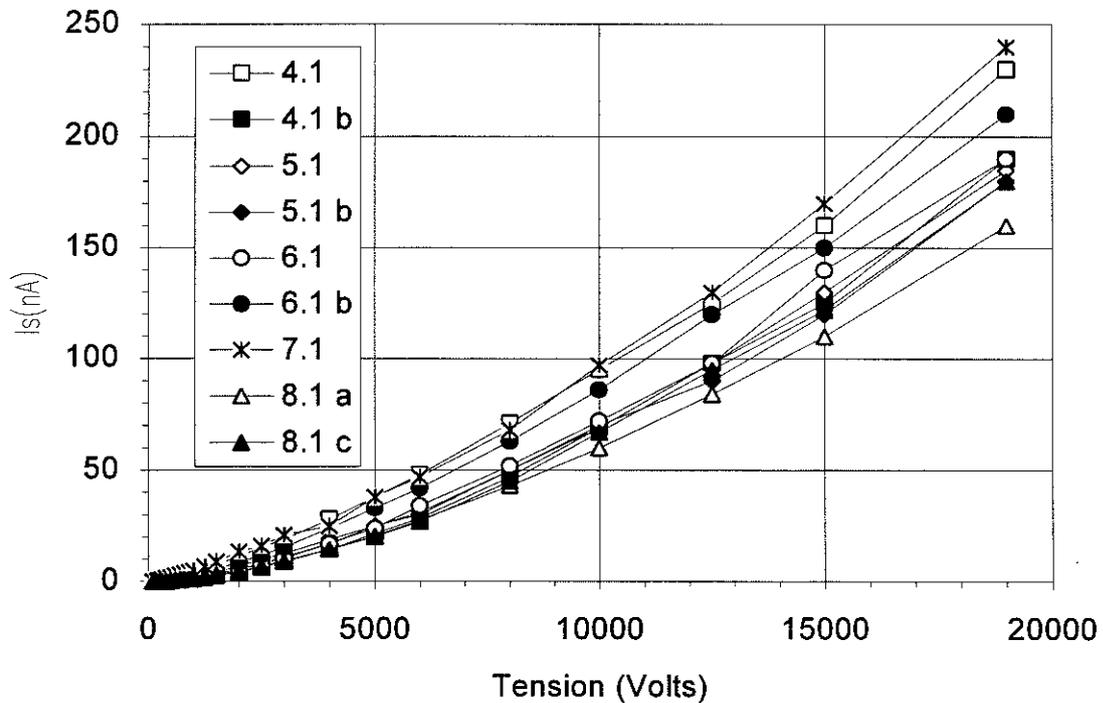
**Figure II.II.5 :** Variations de la force d'interaction en fonction de la tension pour différents couples de demi-sphères L2128 dans l'huile 47V50.



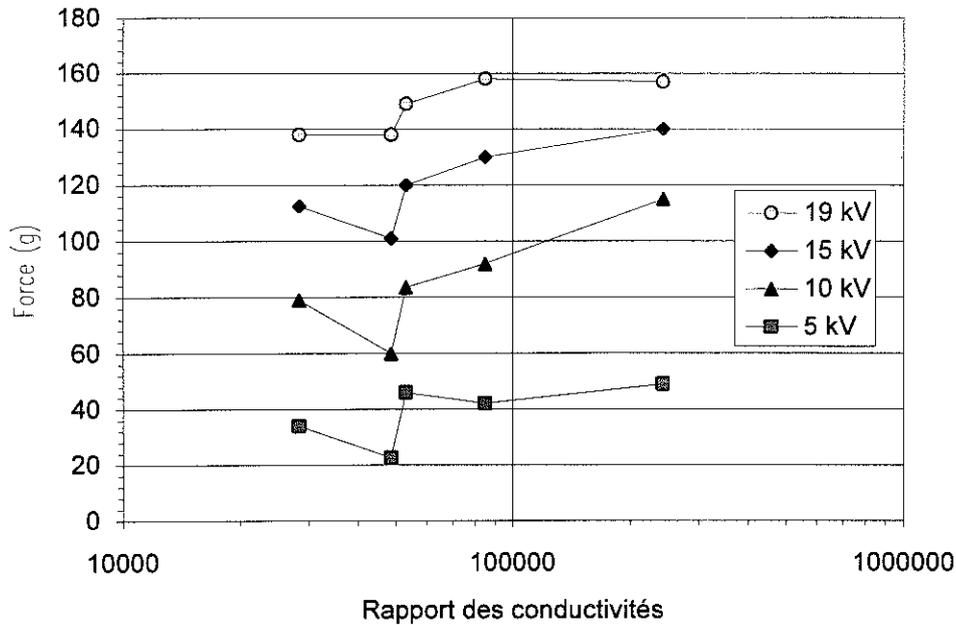
**Figure II.II.6 :** Variations du courant  $I_s$  en fonction de la tension pour différents couples de demi-sphères L2128 dans l'huile 47V50.



**Figure II.II.7 :** Variations de la force d'interaction en fonction de la tension pour différents couples de demi-sphères L2128 dans l'huile 47V50.



**Figure II.II.8 :** Variations du courant  $I_s$  en fonction de la tension pour différents couples de demi-sphères L2128 dans l'huile 47V50.



**Figure II.II.9 :** Variation de la force en fonction de  $\Gamma$  pour L2128 dans l'huile 47V50 (mesures 6.1.b, 4.1, 5.1, 4.1.b et 8.1;c).

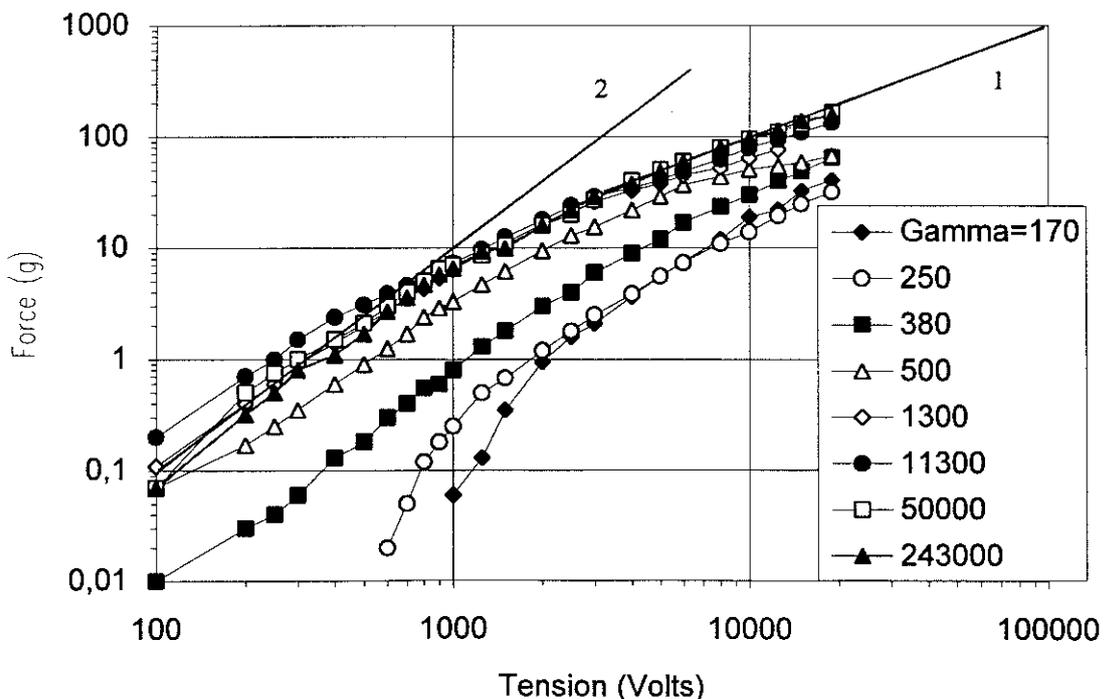
### **II.2.2 Etude du couple L2128/Huile silicone :**

A partir d'un couple de demi-sphères L2128 plongé dans de l'huile 47V50 pure nous ajoutons des sels d'AOT. Ceci a pour conséquence d'augmenter la conductivité du liquide et de diminuer le rapport  $\Gamma$ . Nous avons effectué des mesures pour les valeurs du rapport des conductivités suivantes :  $\Gamma = 170, 250, 380, 500, 1300, 11300, 50000$  et  $243000$ .

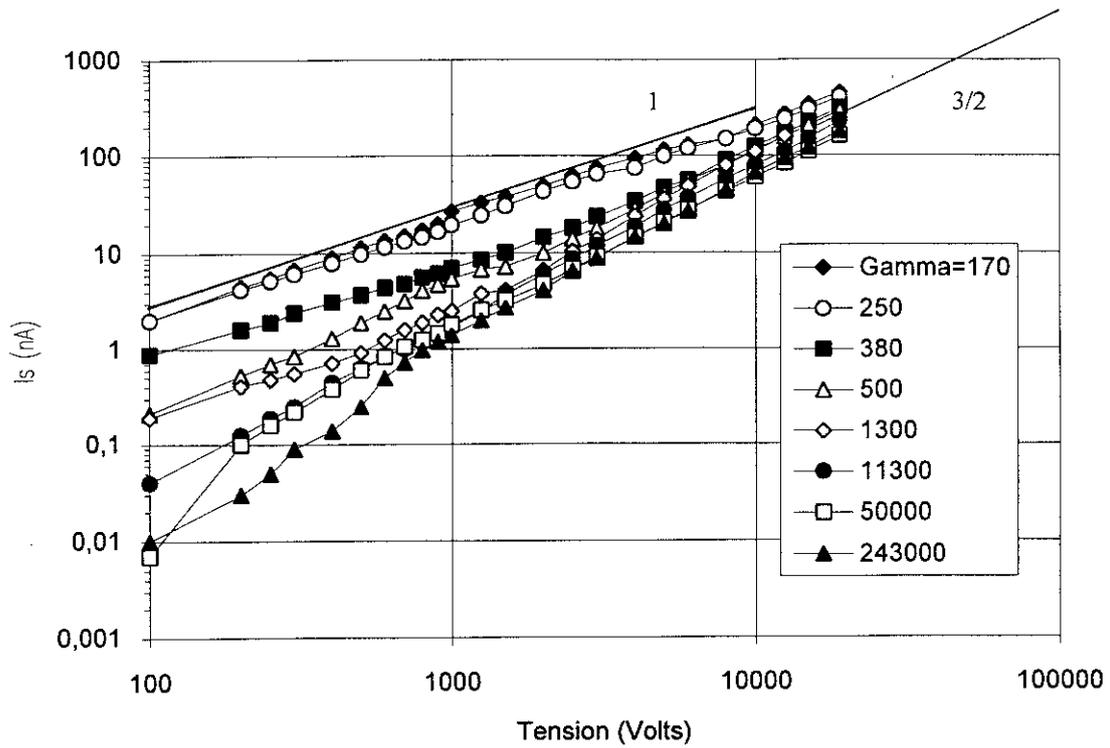
En ce qui concerne la force, nous trouvons pour  $\Gamma = 50000$  et  $\Gamma = 243000$  les tendances asymptotiques, pente 2 pour les champs faibles et pente 1 pour les champs élevés que prévoient les relations (3) et (4) (Fig. II.II.10). Lorsque de l'AOT est ajouté, la variation de la force devient plus compliquée et la seule tendance que l'on peut tirer des mesures, est que la force varie rapidement avec la tension pour les champs faibles puis moins rapidement pour les champs forts. La tension pour laquelle se coupent les asymptotes représentant l'évolution suivant le carré du champ et l'évolution linéaire avec le champ décroît lorsque le rapport  $\Gamma$  augmente comme nous l'avons signalé (§II.1). Pour le courant on constate que plus le rapport  $\Gamma$  est faible, plus le courant est important (Fig. II.II.11). Pour les  $\Gamma$  faibles (170 et 250), le courant varie linéairement avec la tension. Puis pour les  $\Gamma$  intermédiaires, une variation suivant une pente  $3/2$  apparaît pour les champs élevés. Quand  $\Gamma$  augmente la partie ohmique tend à disparaître. Pour les  $\Gamma > 10^4$  une zone où le courant  $I_s$  varie suivant  $U^2$  apparaît à champ faible. Cette zone s'étend vers les champs importants lorsque  $\Gamma$  augmente.

Les variations de la force et du courant suivant la valeur de  $\Gamma$  (échelle semi-logarithmique) pour des tensions égales à 5, 10, 15 et 19 kV sont représentées sur les figures II.II.12 et II.II.13. Nous constatons que le courant décroît avec  $\Gamma$  et tend à se saturer. Ceci nous permet d'avancer que, au-delà d'une certaine valeur de  $\Gamma$ , le courant est déterminé uniquement par le solide ou par l'interface solide/liquide et que la conductivité du liquide n'a plus un rôle déterminant.

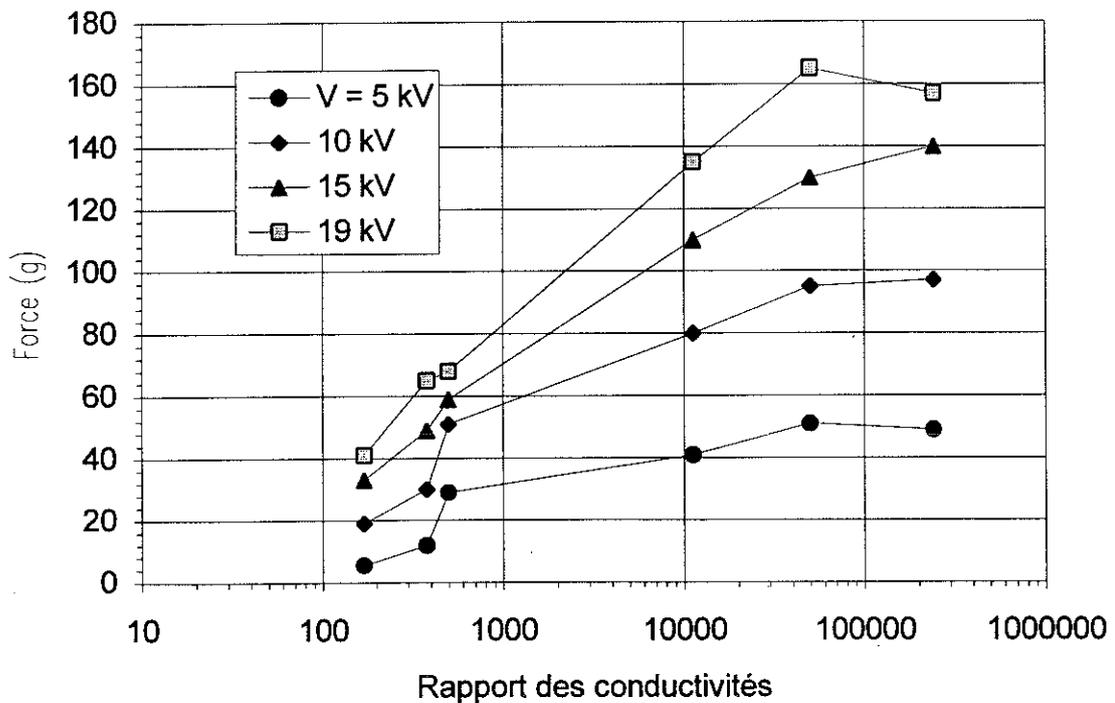
Si nous examinons maintenant la variation de la force en fonction de  $U^2/I_s$  (Fig. II.II.14) nous constatons que l'ensemble des points s'inscrit globalement sur la même courbe de pente 2 sauf pour les  $\Gamma$  importants et les champs faibles où nous retrouvons le comportement dû à la variation de  $I_s$  en fonction de  $U^2$ . Cette courbe universelle, en accord avec la relation (5), confirme la validité du modèle à deux zones. La fluctuation autour de la droite de pente deux que nous pourrions avoir théoriquement provient bien sûr du manque de précision des mesures mais, l'écart étant faible, ceci confirme leur validité. Les courbes correspondant à  $\Gamma = 250$  et 1300 s'éloignant trop de l'ensemble des autres mesures ont été écartées sur les figures 12 à 14. La variation du courant  $I_s$  suivant une pente deux puis 3/2 implique que les processus de conduction sont modifiés lorsque le champ augmente. Le fait que la force ne varie pas de façon quadratique avec  $U^2/I_s$  démontre que le modèle de conduction n'est pas valable, du moins dans sa construction, pour les champs faibles pour de telles valeurs de  $\Gamma$ .



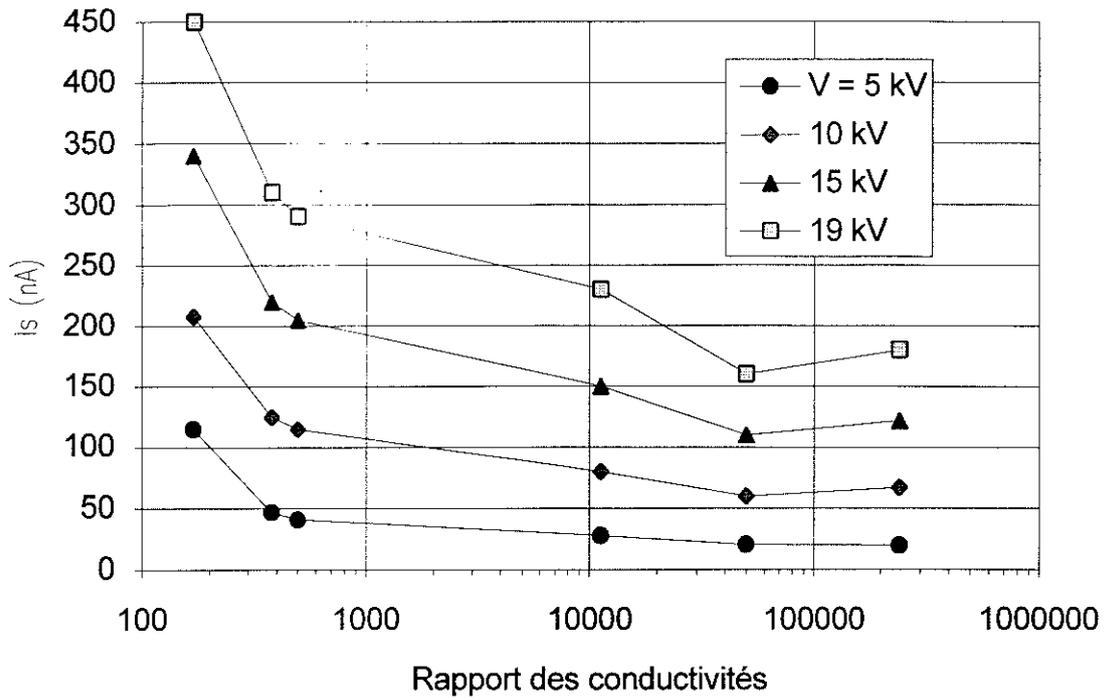
**Figure II.II.10** : Variations de la force en fonction de la tension pour différentes conductivités (pour L2128/47V50).



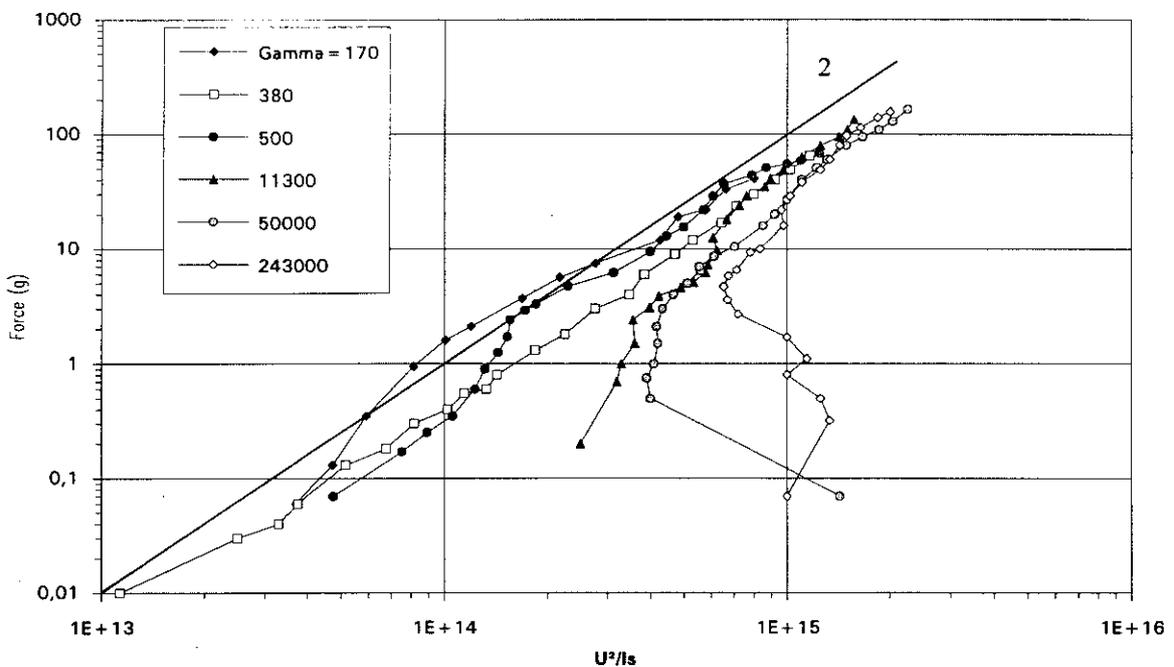
**Figure II.II.11 :** Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour différentes conductivités (pour L2128/47V50).



**Figure II.II.12 :** Variations de la force en fonction du rapport des conductivités pour L2128/47V50 à différentes tensions.



**Figure II.II.13 :** Variations de  $I_s$  en fonction du rapport des conductivités pour L2128/47V50 à différentes tensions.



**Figure II.II.14:** Variations de la force en fonction de  $U^2/I_s$  pour différents rapports des conductivités et pour L2128/47V50.

### **II.2.3 Etude du couple L2128/Huile TF50 :**

Deux séries de mesures ont été réalisées sur deux couples de demi-sphères. La première avec des rapports de conductivités de 30, 300, 1200, 14000 et 120000; la deuxième avec des rapports de conductivités de 45, 1500, 6300 et 22000.

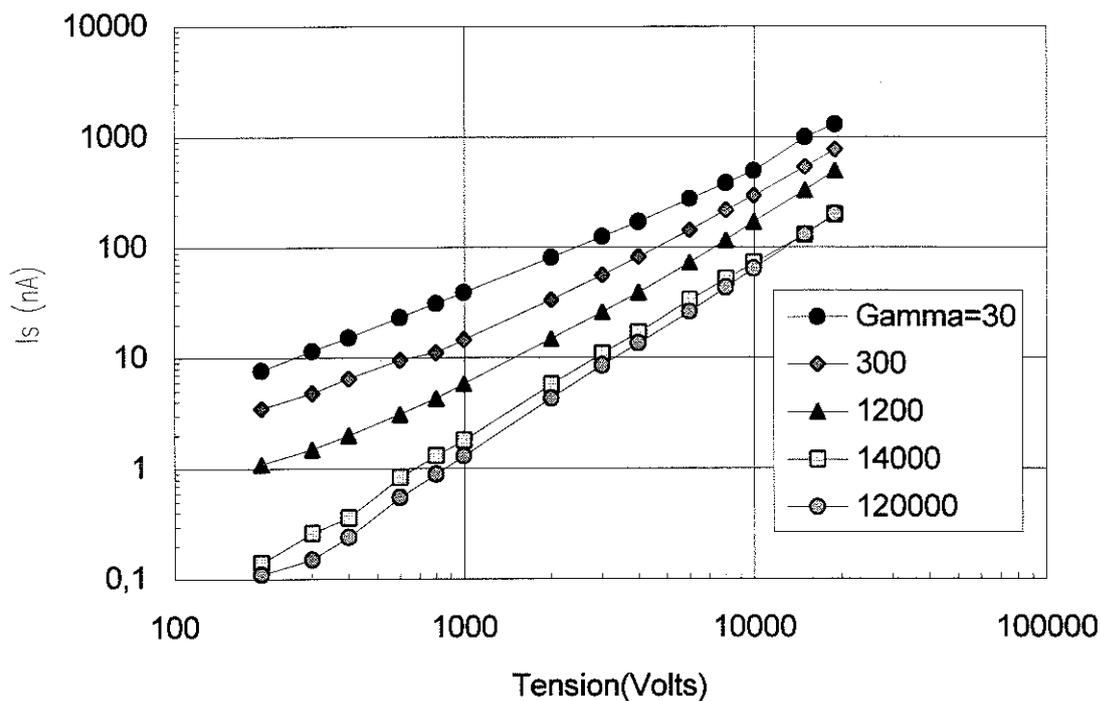
Si nous observons la variation du courant pour les deux séries (Fig. II.II.15 et 17), nous constatons que le comportement est globalement identique à celui observé avec l'huile silicone (linéaire pour les  $\Gamma$  faibles, puis disparition de la linéarité pour laisser la place à une variation suivant une puissance proche de  $3/2$  quand  $\Gamma > 10^4$ ). Pour la force (Fig. II.II.16 et 18), nous retrouvons une pente 2 pour les champs faibles et une pente 1 pour les champs forts ainsi qu'une diminution de la tension à laquelle se croisent les asymptotes quand  $\Gamma$  est augmenté.

Au regard des variations de  $I_s$  et de  $F$  en fonction du rapport des conductivités (Fig. II.II.20 et 21) nous constatons que les variations sont similaires à celles obtenues pour l'huile silicone si ce n'est qu'il ne semble pas y avoir de saturation de la force. En effet la force est nettement plus faible pour  $\Gamma = 120000$  mais il faut ici faire une remarque : pour obtenir ce rapport  $\Gamma$  nous avons dû purifier l'huile TF50 à l'aide d'Attapulgite (sorte d'argile); l'huile perd alors certains de ses composés et devient blanche. Nous n'avons donc pas dans ce cas exactement la même composition chimique que dans les cas précédents et les résultats ne sont plus forcément comparables.

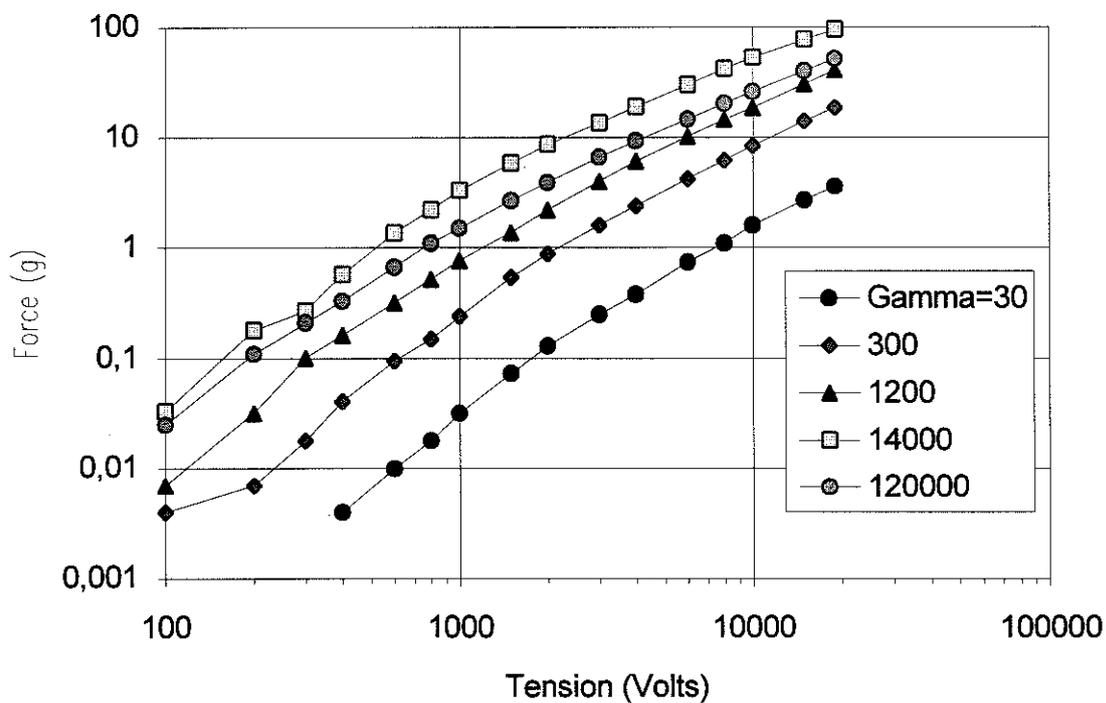
La variation de la force en fonction de  $U^2/I_s$  est très similaire à celle de l'huile silicone 47V50 pour l'ensemble des valeurs de  $\Gamma$  sauf pour  $\Gamma = 120000$  où la pente est pratiquement égale à quatre et pour les  $\Gamma > 10^4$  où pour les champs faibles nous retrouvons l'évolution due à la variation quadratique du courant avec la tension (Fig. II.II.21). Les valeurs de la force pour  $\Gamma = 6300$  étant plus élevées que pour les autres mesures nous avons écarté cette série de mesures.

### **II.2.4 Etude du couple L2128/Jarylec :**

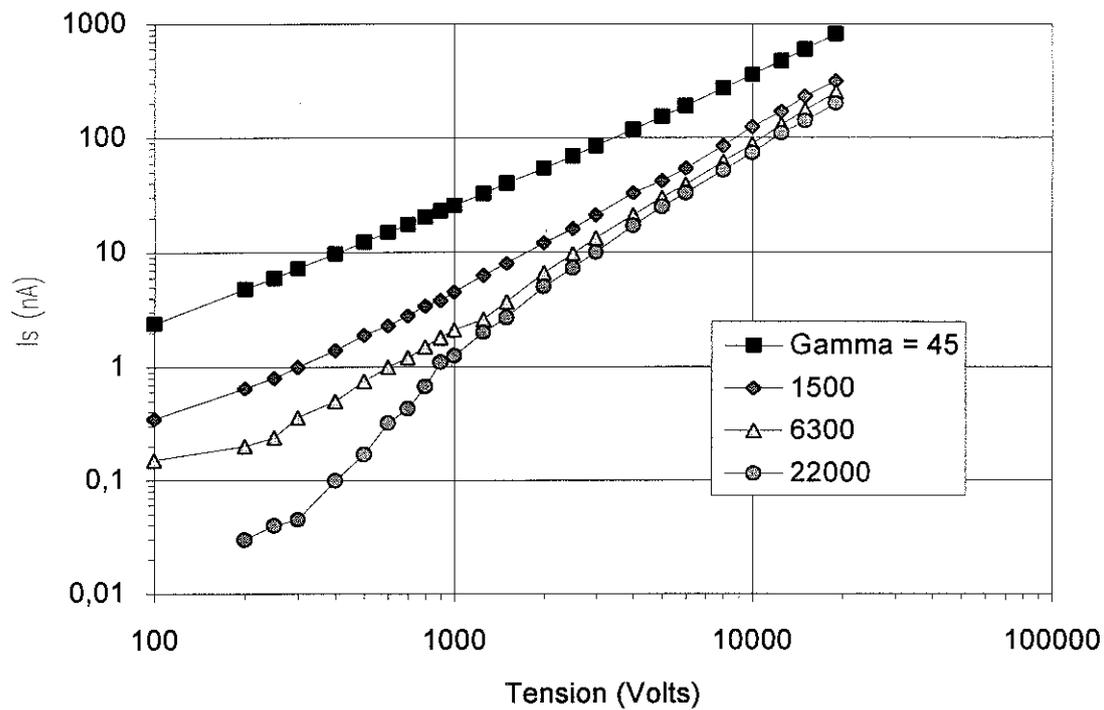
Le Jarylec C101D est un liquide diélectrique pour condensateur composé d'un mélange de monobenzyl-toluène et de dibenzyl-toluène (Elf-Atochem). Nous procédons de la même manière que dans les deux cas précédents, c'est-à-dire des sels d'AOT sont ajoutés au Jarylec pour diminuer le rapport  $\Gamma$ . Quatre rapports sont étudiés,  $\Gamma = 60, 250, 3400$  et  $14000$  (pour  $\Gamma = 3400$  nous présentons deux séries de mesures).



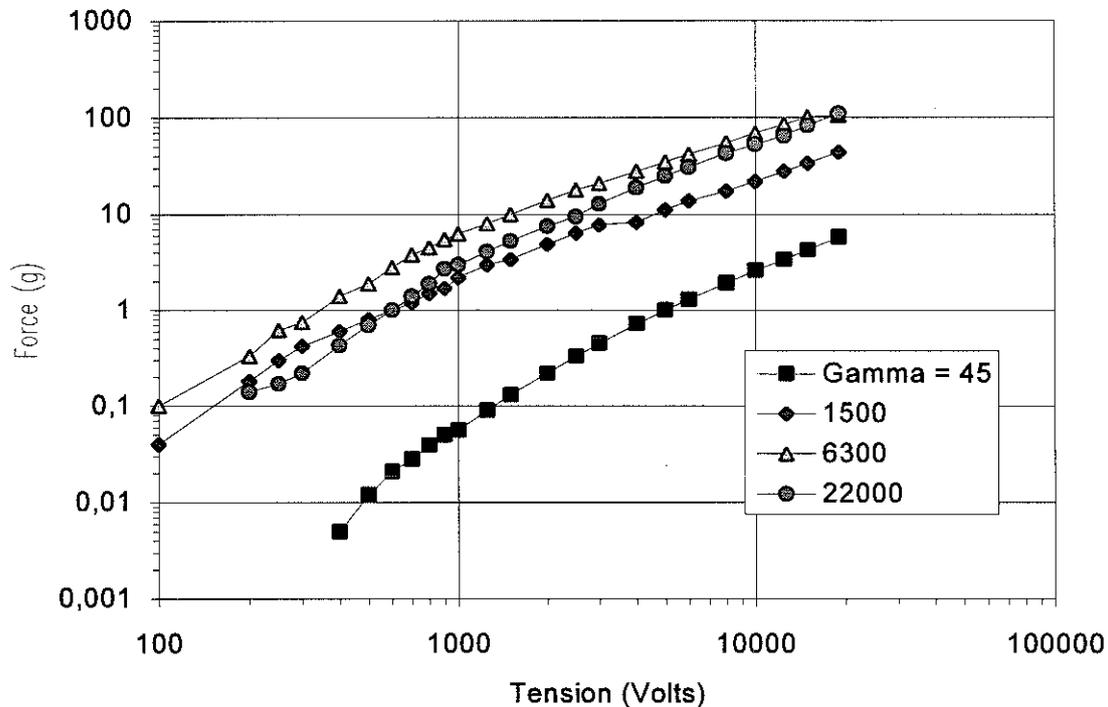
**Figure II.II.15** : Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour différentes conductivités et pour L2128/TF50 (première série).



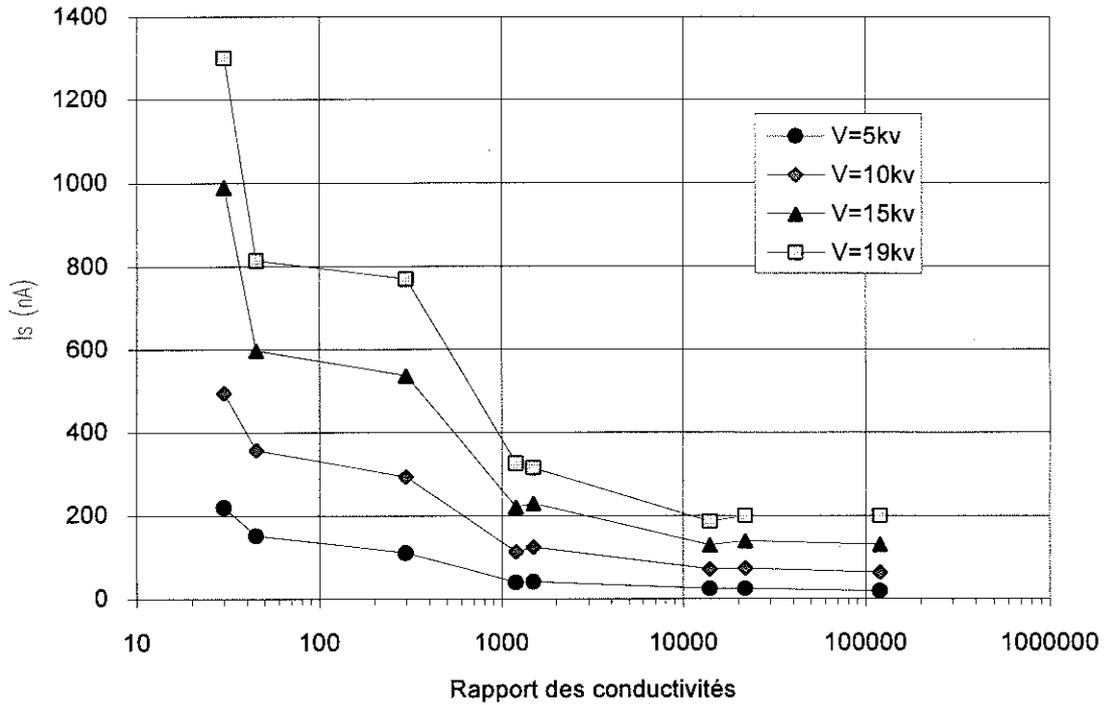
**Figure II.II.16** : Variations de la force en fonction de la tension pour différentes conductivités et pour L2128/TF50 (première série).



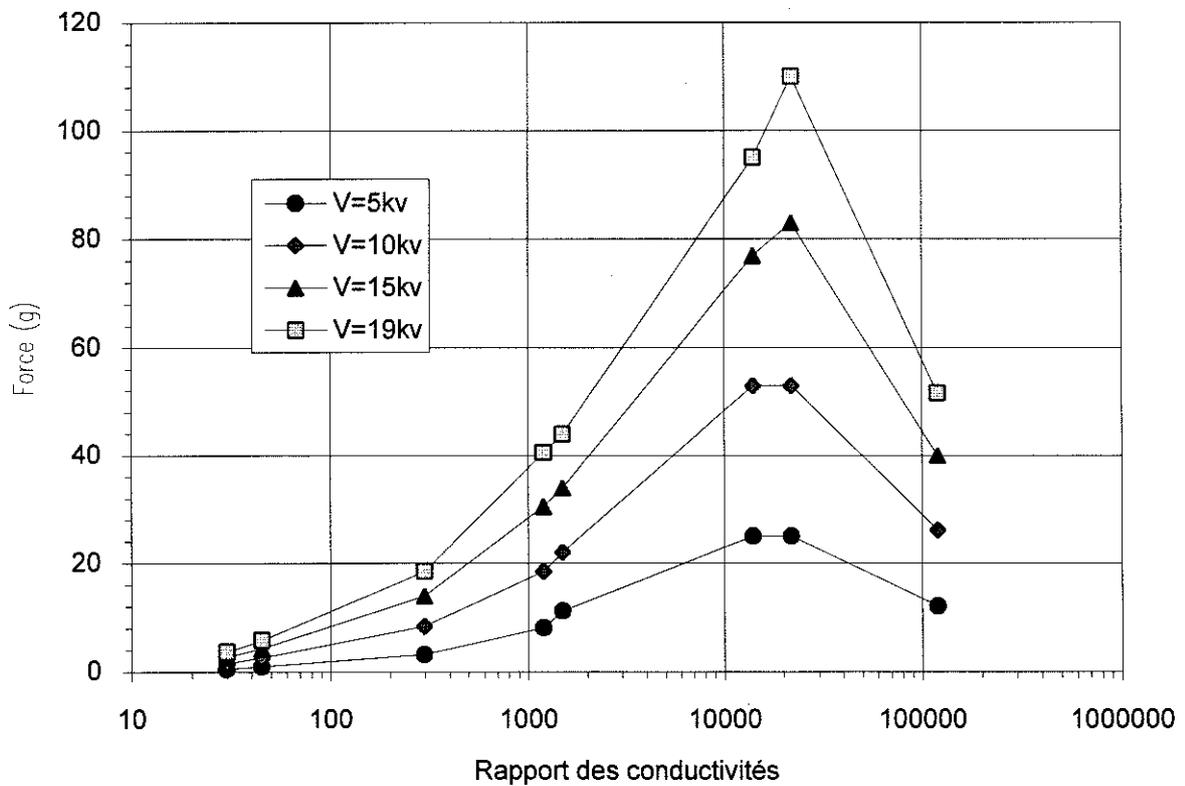
**Figure II.II.17** : Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour différentes conductivités et pour L2128/TF50 (deuxième série).



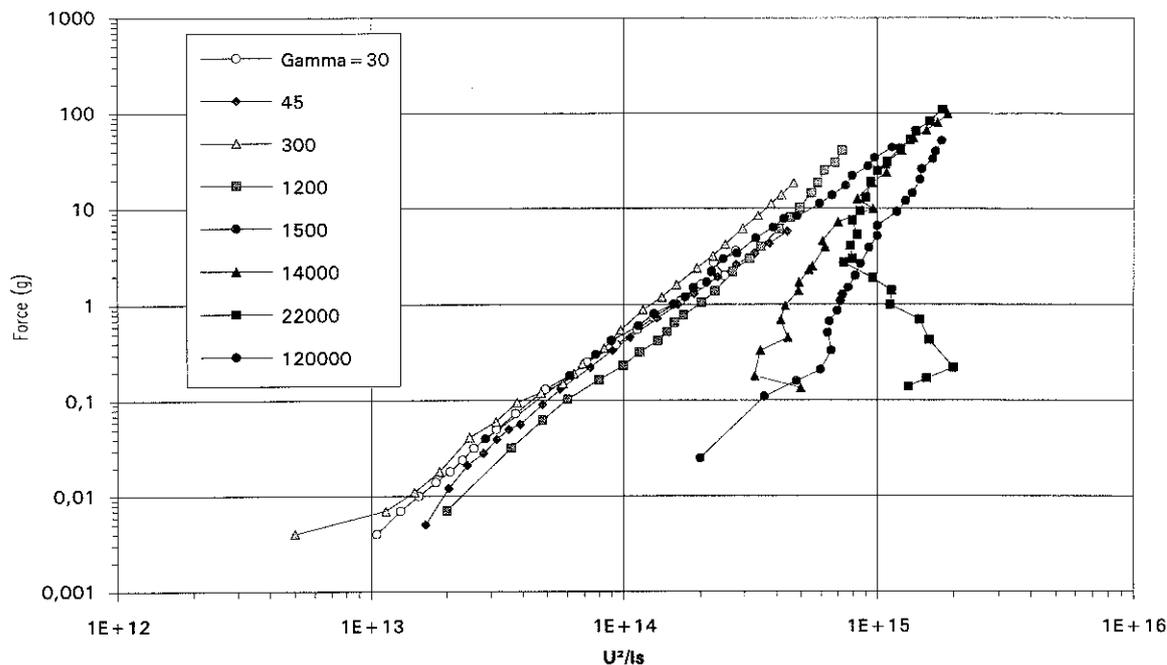
**Figure II.II.18** : Variations de la force en fonction de la tension pour différentes conductivités et pour L2128/TF50 (deuxième série).



**Figure II.II.19** : Variations de  $I_s$  en fonction du rapport des conductivités pour L2128/TF50 à différentes tensions (synthèse).



**Figure II.II.20** : Variations de  $F$  en fonction du rapport des conductivités pour L2128/TF50 à différentes tensions (synthèse).

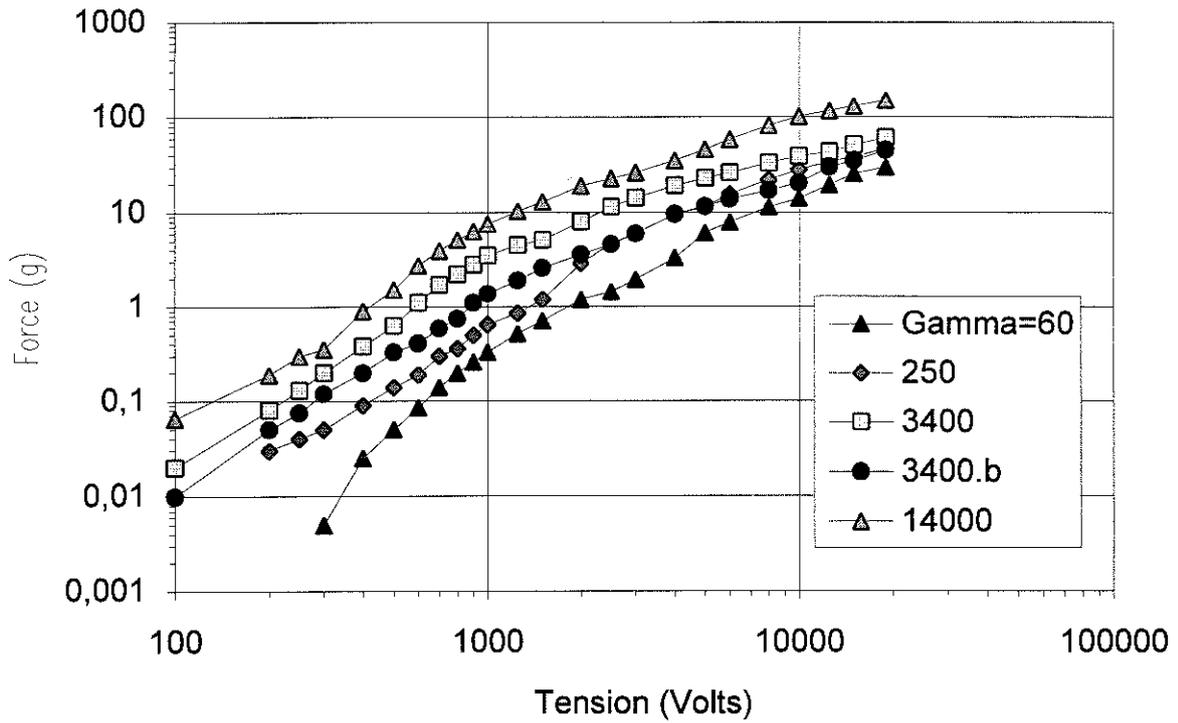


**Figure II.II.21** : Variations de F en fonction de  $U^2/Is$  pour différents rapports des conductivités et pour L2128/TF50 (synthèse).

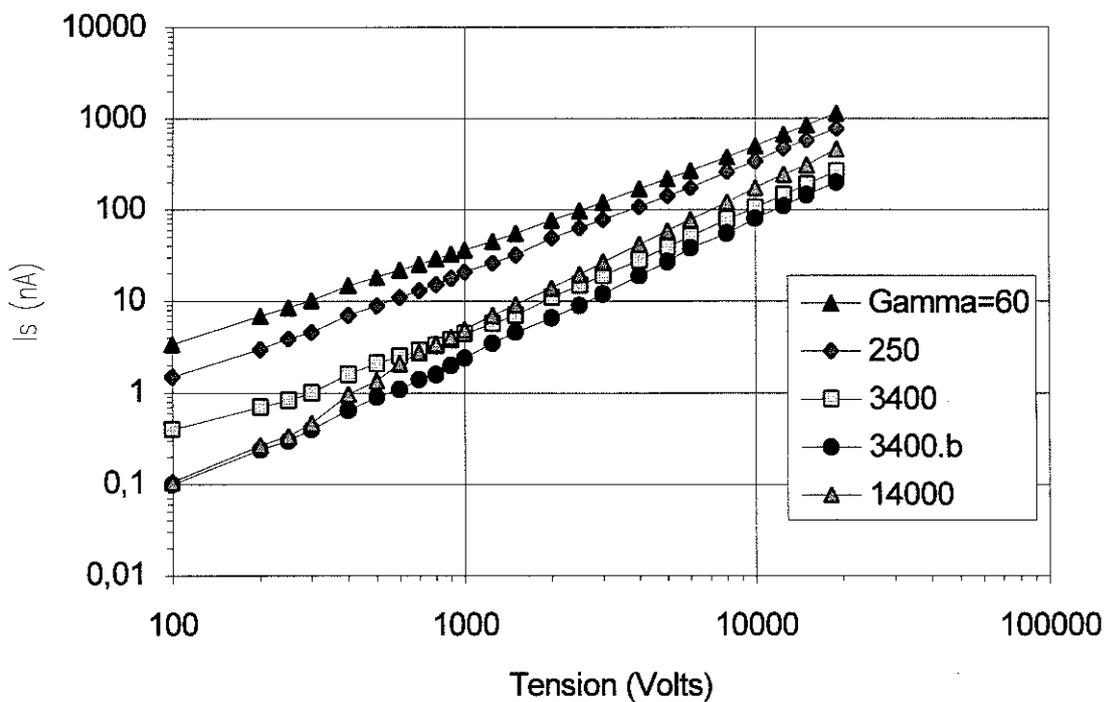
Nous retrouvons les mêmes tendances que pour les liquides précédents (Fig. II.II.22 et II.II.23) : variation suivant le carré du champ électrique pour les faibles tensions et variation linéaire pour les tensions élevées avec diminution de la valeur du champ correspondant à l'intersection des asymptotes lorsque le rapport  $\Gamma$  augmente. Pour le courant, nous avons une variation ohmique pour les rapports de conductivités faibles. Lorsque  $\Gamma$  augmente, la partie linéaire diminue et le courant évolue vers une loi de puissance  $3/2$ . Pour  $\Gamma = 14000$  le courant évolue tout d'abord quadratiquement avec  $U$  puis suivant une puissance  $3/2$ . Pour la variation de la force en fonction de  $U^2/Is$  les tendances sont également les mêmes que pour les liquides précédents (Fig. II.II.24).

Il nous faut noter que les deux courbes correspondant au rapport  $\Gamma = 3400$  s'écartent de l'ensemble des autres courbes. En particulier le courant  $Is$  est plus faible, ce qui se retrouve dans la variation de la force en fonction de  $U^2/Is$  où les abscisses sont plus importantes. Les variations de F et de  $Is$  en fonction du rapport des conductivités sont ici aussi analogues à celles obtenues avec les autres liquides (excepté pour  $\Gamma = 3400$ ).

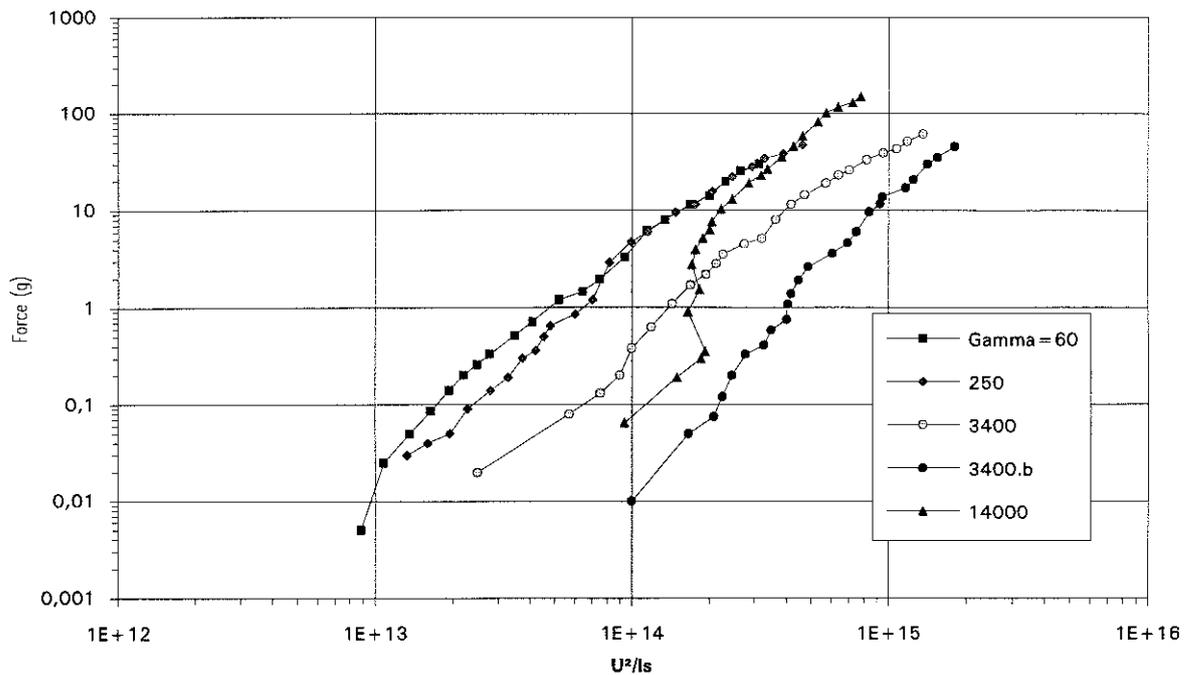
La chronologie des mesures a ici une importance car pour  $\Gamma = 14000$ , 250 et 60 elles ont été effectuées dans un intervalle de temps de 15 jours alors que pour  $\Gamma = 3400$  elles ont été réalisées deux mois plus tard. Il n'est pas impossible que des réactions physico-chimiques se soient produites entre le polymère et le Jarylec, et plus particulièrement avec le plastifiant et les ions contenus dans le polymère.



**Figure II.II.22** : Variations de F en fonction de la tension pour différents rapports des conductivités et pour L2128/Jarylec.



**Figure II.II.23** : Variations de Is en fonction de la tension pour différents rapports des conductivités et pour L2128/Jarylec.



**Figure II.II.24** : Variations de F en fonction de  $U^2/Is$  pour différents rapports des conductivités et pour L2128/Jarylec.

### **II.2.5 Etude du couple L2128/Ugilec :**

L'Ugilec est un liquide diélectrique dont la permittivité relative est  $\epsilon_L \cong 5\epsilon_0$  et nous avons dans ce cas un rapport des conductivités  $\Gamma \approx 80$ . Deux essais ont été réalisés à un jour d'intervalle (A et B) en renouvelant le liquide entre les deux essais. Dans le deuxième essai la force a été mesurée deux fois pour  $U > 4kV$  (B et B'). Un troisième essai (C) a été réalisé cinq jours après la mesure B sans changer de liquide, le rapport  $\Gamma$  était alors égal à 11.

Si nous regardons en premier lieu le courant  $I_s$  (Fig. II.II.25), on s'aperçoit qu'il croît tout d'abord avec une pente 1, ce qui est analogue aux variations que l'on a pu observer avec les huiles TF50 et 47V50 pour des  $\Gamma$  de cet ordre (les courbes B et B' sont confondues). Cependant entre 300 et 1500 volts, le courant présente une tendance à la saturation. La cause de cette saturation n'est pas définie. Au-delà de 1500 Volts le courant repart suivant une pente proche de 1. Pour la mesure C le courant est plus important et varie linéairement sauf pour les champs élevés où la variation de la courbe s'écarte de la pente 1. Notons que la présence du socle en Téflon ayant déjà été mis en contact avec de l'AOT n'est peut être pas sans conséquence sur l'augmentation de la conductivité du liquide. Il ne faut pas non plus négliger les interactions, comme dans le cas du Jarylec, entre le polymère et le liquide.

Pour la force nous n'avons pu la mesurer que pour des tensions supérieures à 400 Volts car pour les tensions inférieures elle était trop faible. On commence donc la mesure de la force

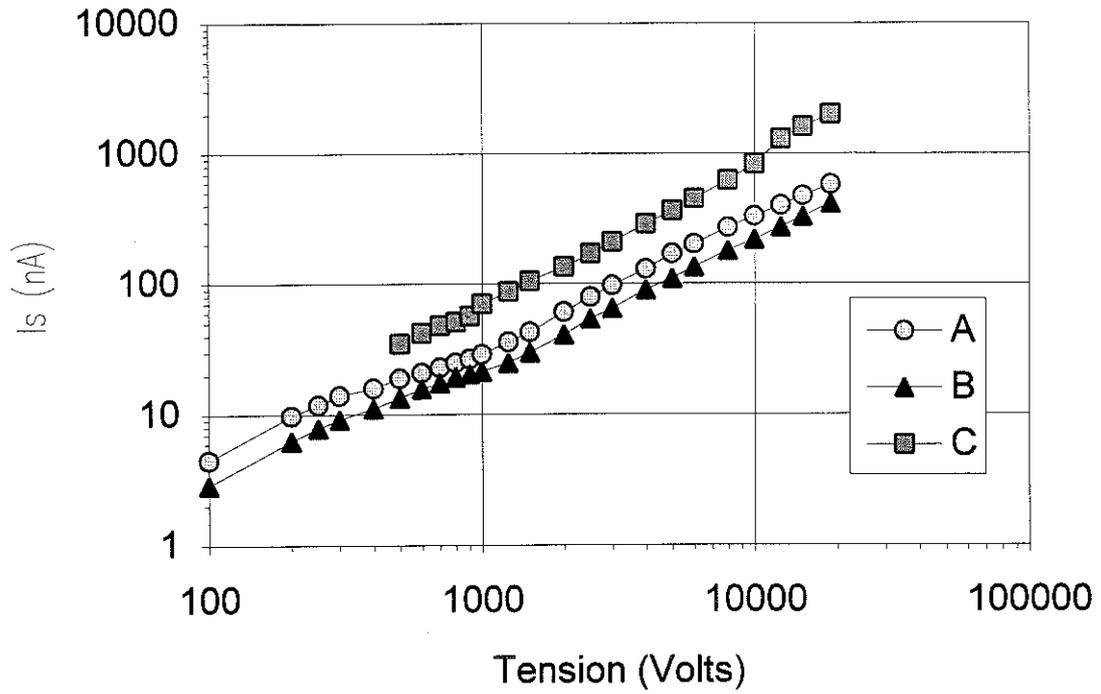
dans la zone de saturation du courant. Dans cette zone la force augmente avec une pente 4 à la différence de la pente 2 observée habituellement (Fig. II.II.26). Au-delà de l'intervalle de saturation ( $U \cong 1,5$  kV) la variation est sensiblement quadratique puis pour des tensions supérieures à 4-5 kV la pente diminue et tend vers 1,3. Dans les deux essais B et B' la force reste similaire jusqu'à 4kV puis devient plus faible lors du deuxième essai. La différence entre les courbes B et B' illustre la sensibilité des mesures à des paramètres qu'il nous est difficile de connaître et donc de maîtriser. Il semble que la saturation soit corrélée avec une augmentation très rapide de la force. La variation pour la courbe C commence par une pente 2 et se termine par une pente de 1,2.

La variation de F en fonction de  $U^2/I_s$  (Fig. II.II.27) est ici aussi différente de celles obtenues précédemment puisque la force augmente avec une pente de 2,6 puis tend vers une pente de 1,2 au-delà de 10 g pour les courbes A, B et B' et au-delà de 2 g pour la courbe C.

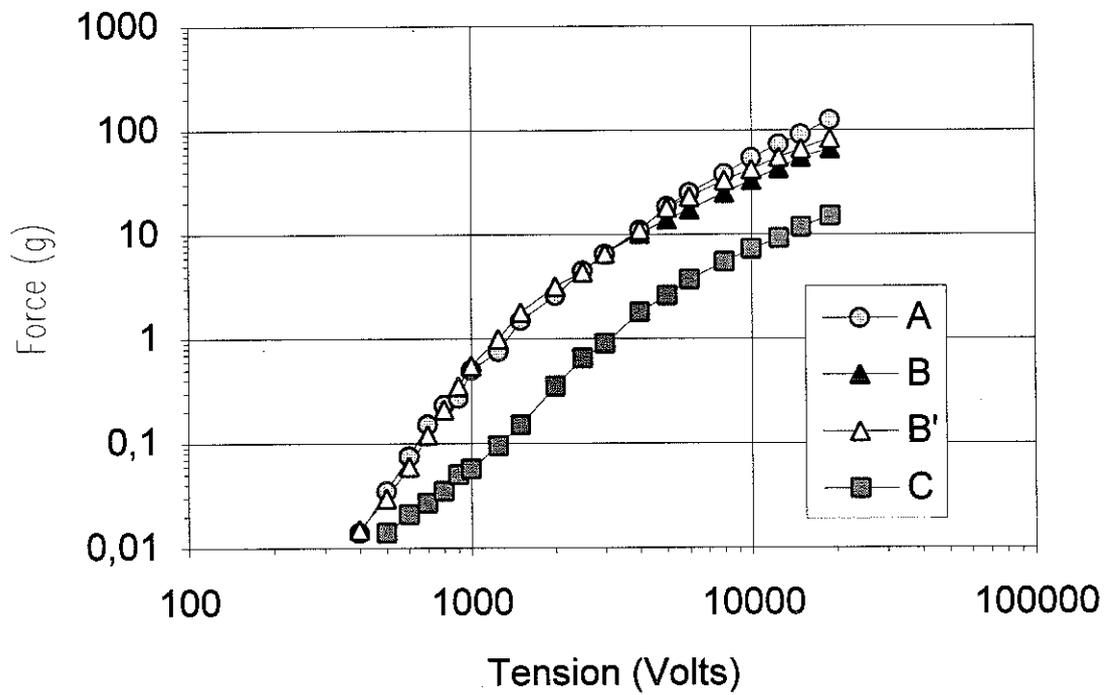
### **II.2.6 Etude du couple L2124/47V50 :**

Le polymère L2124 contient moins de plastifiant que le L2128 et il est donc moins conducteur. Deux couples de demi-sphères ont été réalisés et testés dans de l'huile silicone 47V50. Ceci nous donne un rapport  $\Gamma$  de l'ordre de 15000. En utilisant un des couples nous avons fait varier le rapport gamma en ajoutant des sels d'AOT. Les rapports  $\Gamma$  obtenus sont : 15000, 10000, 440, 240, 42, 30 et 16.

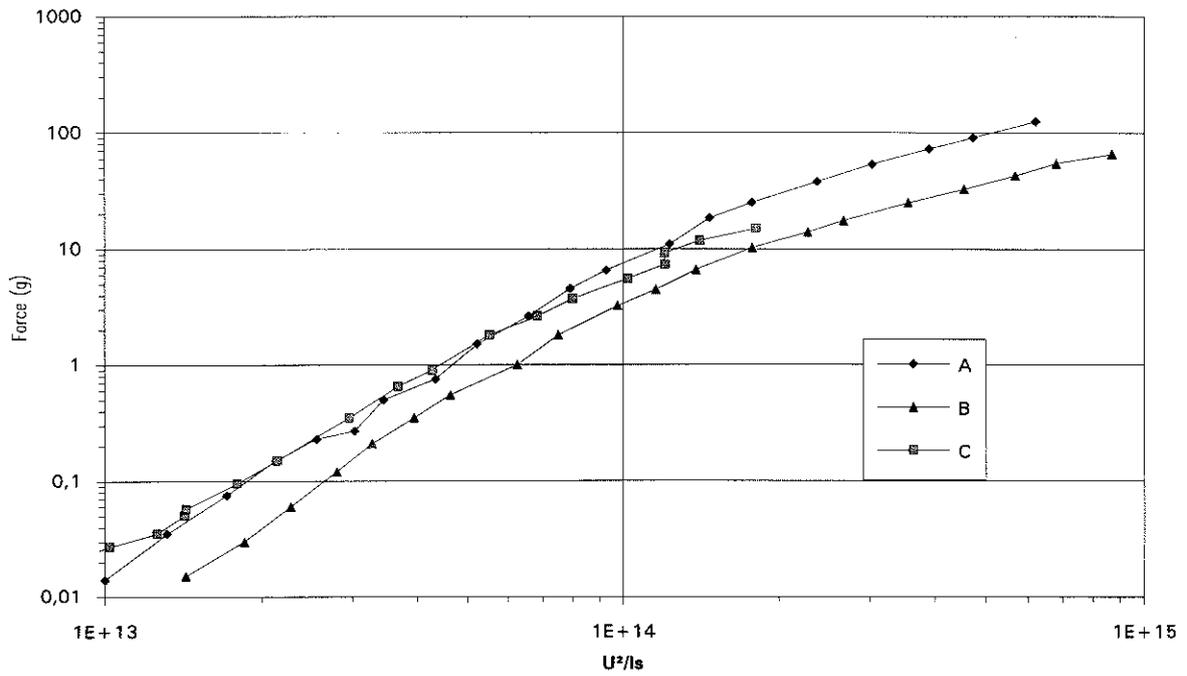
Les allures des courbes sont identiques à celles obtenues avec le L2128 dans la même huile (Fig. II.II.28 et 29). Au niveau de la force nous pouvons remarquer que pour  $\Gamma = 16$  la variation est sensiblement quadratique sur toute la gamme de tension, ce qui est concordant avec l'expression que nous avons donnée pour l'évolution de la force quand  $\Gamma$  est faible. Nous pouvons remarquer que pour  $\Gamma > 200$  et les tensions supérieures à 5 kV, les valeurs du courant  $I_s$  sont quasiment les mêmes. Les variations de la force suivant  $U^2/I_s$  sont également analogues à celles obtenues dans le cas L2128 (Fig. II.II.30). Si nous regardons la variation de F en fonction du rapport gamma nous ne pouvons pas réellement envisager une saturation de la force quand  $\Gamma$  devient important comme dans le cas de L2128/47V50 (Fig. II.II.31). La variation du courant est quant à elle similaire au cas précédent (Fig. II.II.32).



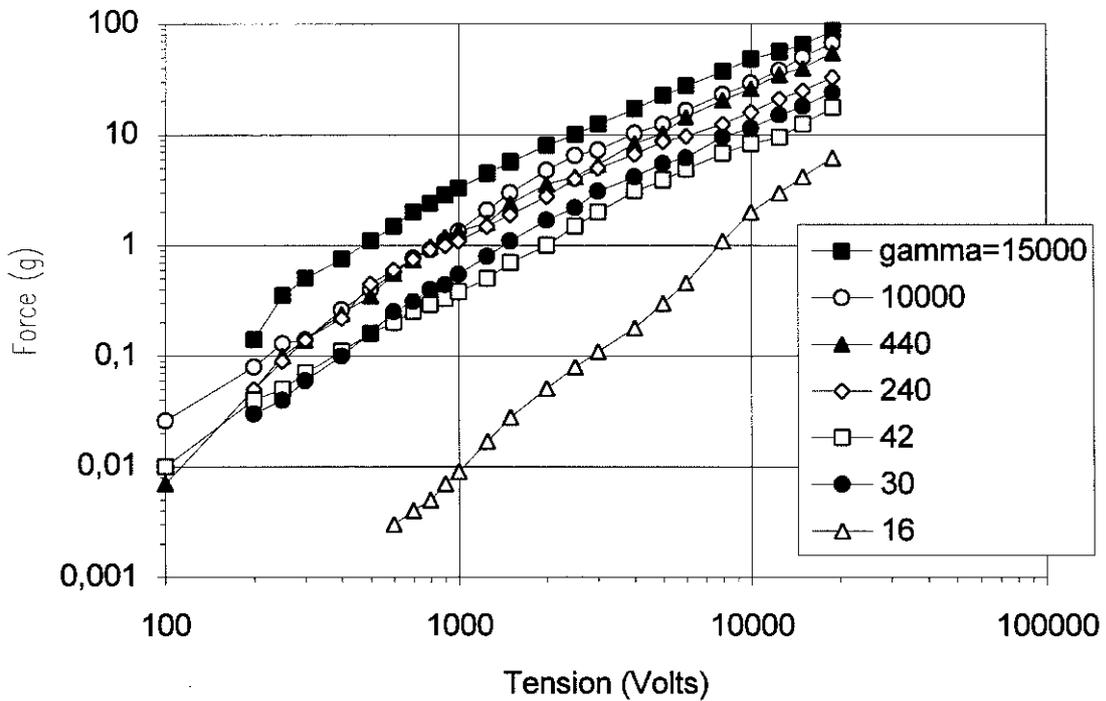
**Figure II.II.25 :** Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour L2128/Ugilec.



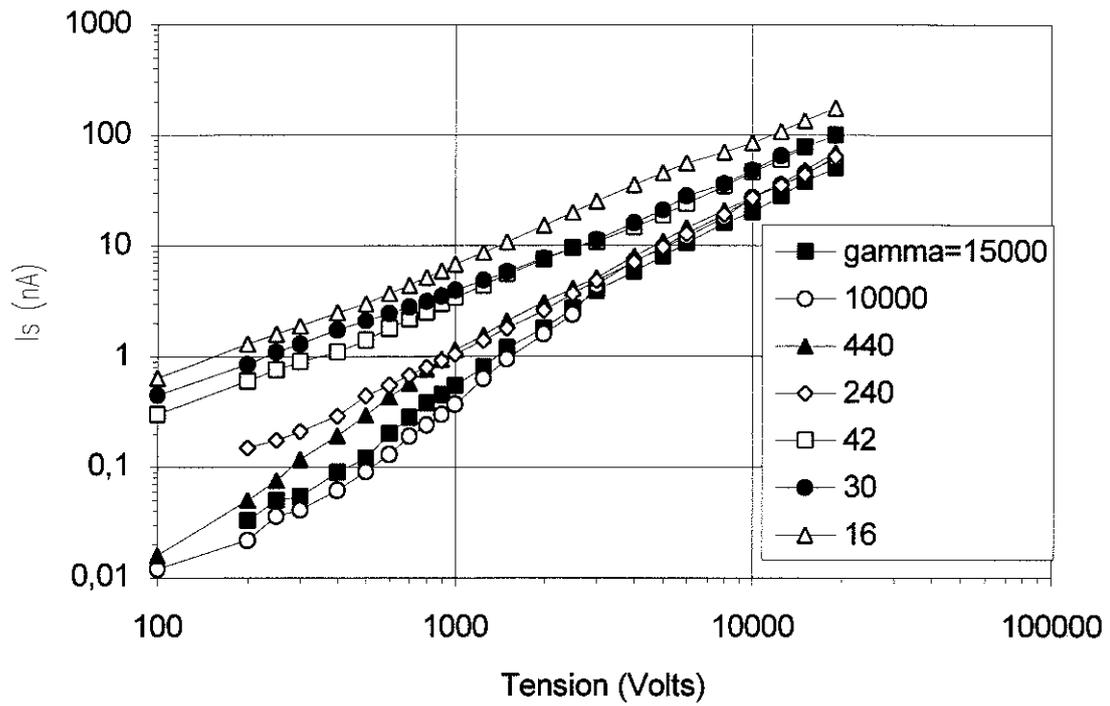
**Figure II.II.26 :** Variations de  $F$  en fonction de la tension pour L2128/Ugilec.



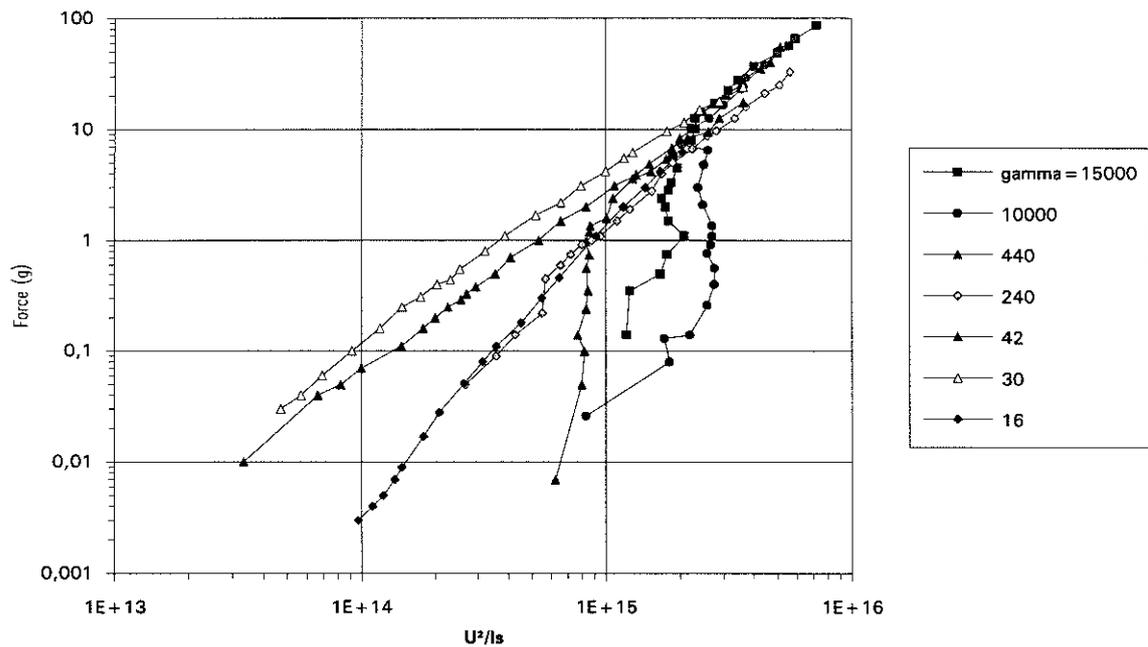
**Figure II.II.27 :** Variations de F en fonction de  $U^2/Is$  pour L2128/Ugilec.



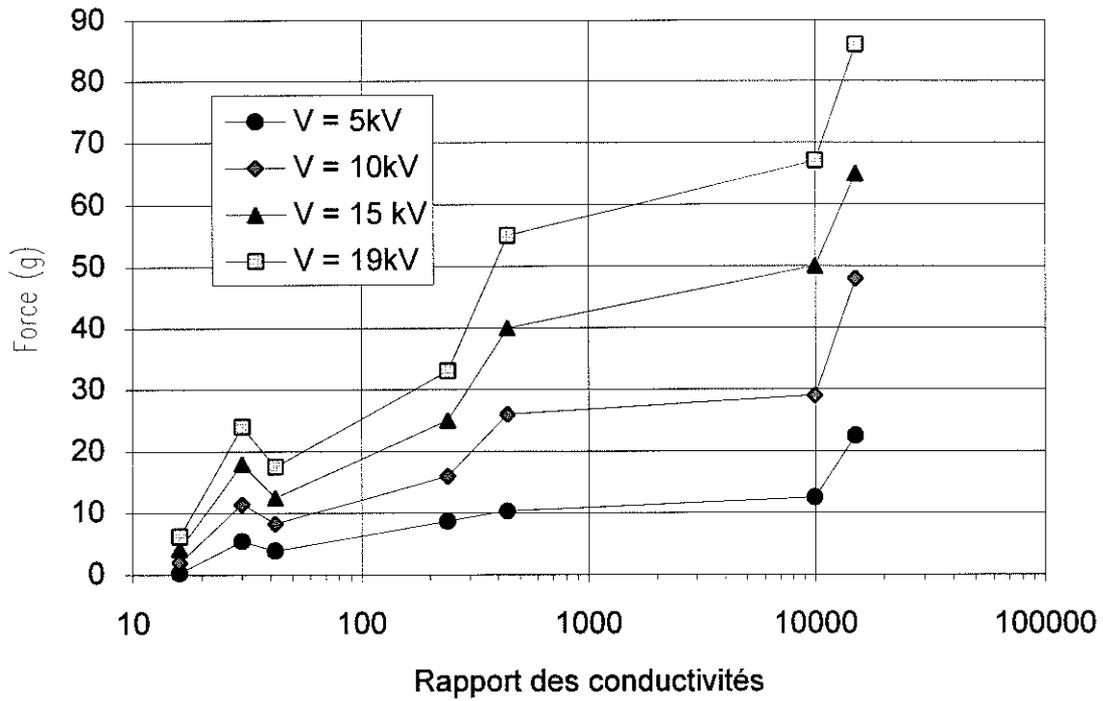
**Figure II.II.28 :** Variations de F en fonction de la tension pour L2124/47V50.



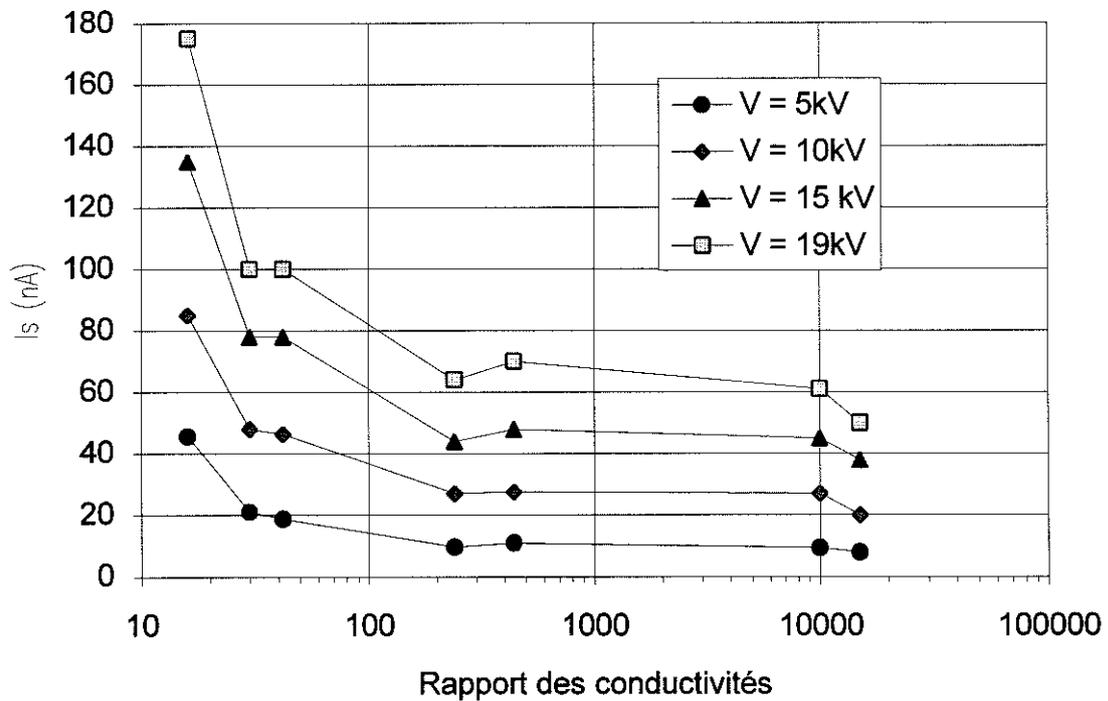
**Figure II.II.29** : Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour L2124/47V50.



**Figure II.II.30** : Variations de  $F$  en fonction de  $U^2/I_s$  pour L2124/47V50.



**Figure II.II.31** : Variations de F en fonction du rapport des conductivités pour L2124/47V50.



**Figure II.II.32** : Variations de  $I_s$  en fonction du rapport des conductivités pour L2124/47V50.

## II.3 Discussion des résultats

Nous venons de voir à travers la présentation de nos résultats que le modèle de conduction nous permettait de prédire la loi de variation de la force d'interaction en fonction du champ électrique (quadratiquement à champ faible et linéairement à champ fort). Il nous a permis également d'établir une loi de variation de la force quadratique avec  $(U^2/Is)$  qui est très bien vérifiée. La comparaison de nos résultats est délicate car le rapport des conductivités n'est pas défini avec une grande exactitude et nous avons signalé que la précision sur les valeurs de nos mesures étaient de  $\pm 10\%$ . Faisons en premier lieu deux remarques :

- Nous nous intéresserons essentiellement aux résultats obtenus pour des tensions supérieures à 1 kV car pour les tensions plus faibles la dispersion sur les mesures est trop importante. De plus dans les fluides ER les particules sont soumises à des champs de l'ordre du 1 kV/mm ce qui correspond dans notre cellule à une tension de 14 kV.
- Nous avons effectué des mesures dans des huiles silicones de différentes viscosités (47V1, 47V2, 47V10 et 47V350) sans addition d'AOT. Ces mesures ont donné des résultats très semblables à ceux obtenus avec l'huile 47V50 (c'est pourquoi nous ne les présentons pas ici). Néanmoins l'huile 47V1 nous a permis d'avoir une valeur de  $\Gamma$  comparable avec celle d'autres liquides et nous l'utiliserons par la suite dans nos comparaisons.

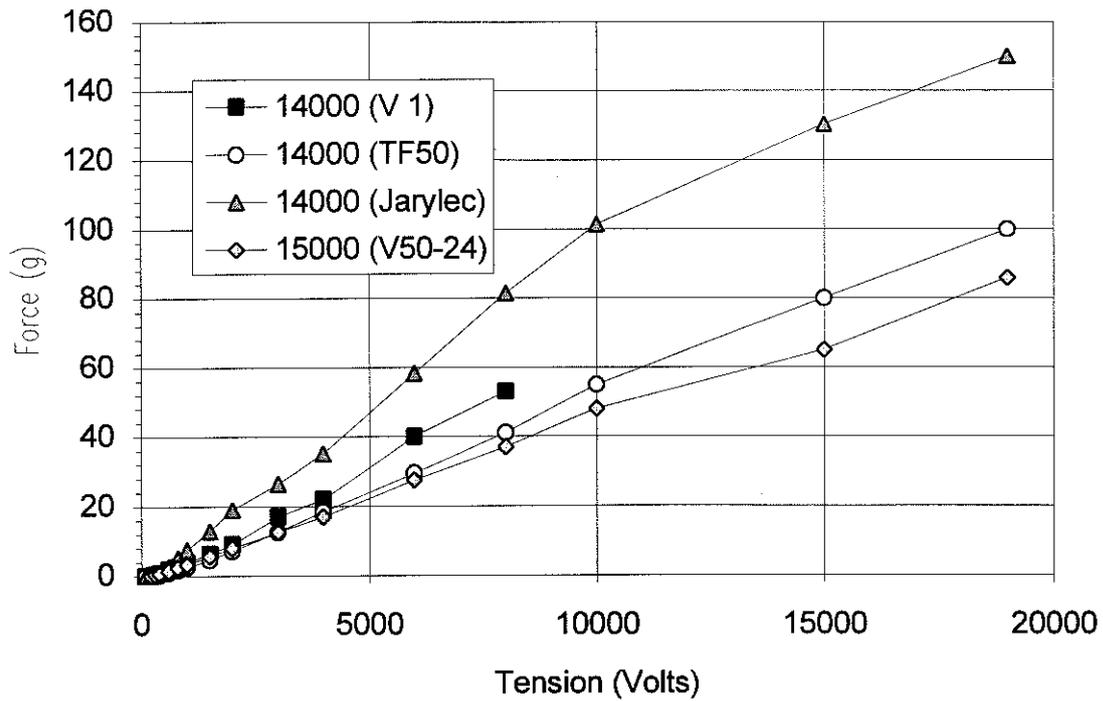
Comme nous l'avons vu précédemment les variations du courant et de la force en fonction du rapport des conductivités sont similaires pour les huiles 47V et TF50. Si nous comparons les résultats obtenus pour  $\Gamma = 14000$  dans trois liquides purs, TF50, 47V1 et Jarylec (Fig. II.II.33 et 34), nous constatons que la force et le courant obtenus avec le Jarylec ont des valeurs supérieures à celles obtenues avec les huiles TF50 et 47V1. Nous remarquons également que la force dans l'huile 47V1 est légèrement plus importante que dans l'huile TF50, les courants étant équivalents. Pour un gamma d'environ 250-300 (Fig. II.II.35 et II.II.36) les courbes confirment le fait que la force et le courant sont plus importants dans le Jarylec. La comparaison de la variation du courant en fonction de  $\Gamma$  pour L2128/TF50 et L2128/47V50 confirme le fait que les valeurs sont similaires pour les  $\Gamma > 10^4$  (Fig. II.II.37).

Nous pouvons donc envisager d'établir la hiérarchie suivante en ce qui concerne l'intensité de la force et le courant :

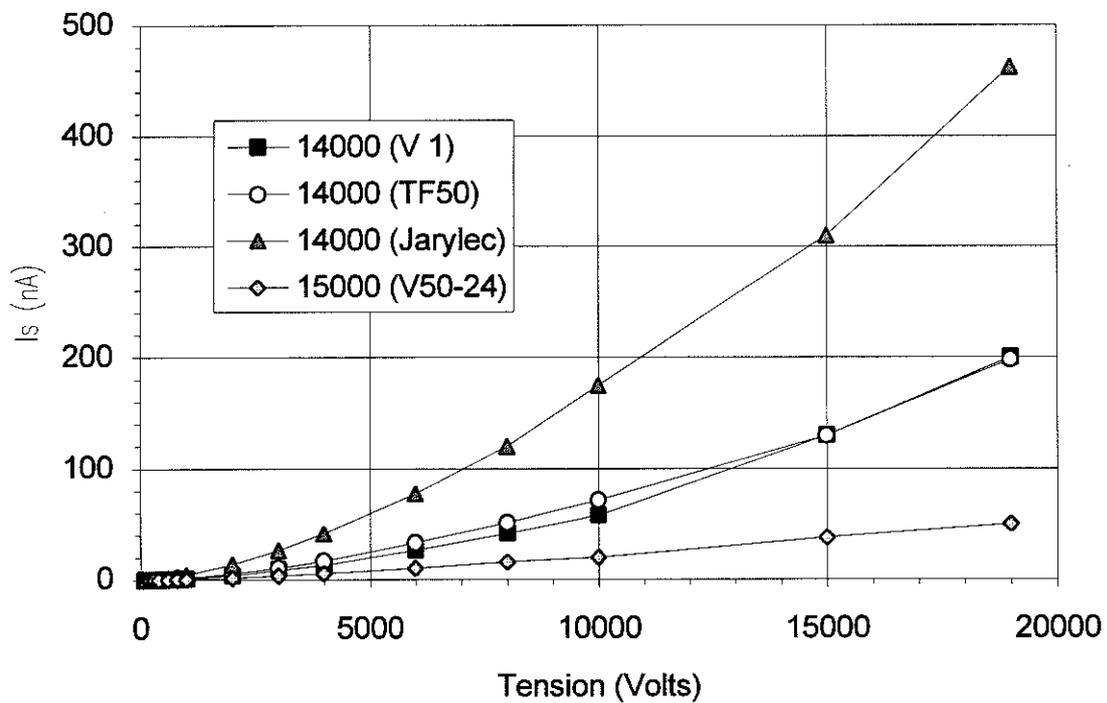
$$F(\text{Jarylec}) > F(47V50) > F(\text{TF50})$$

$$Is(\text{Jarylec}) > Is(\text{TF50}) \cong Is(47V50)$$

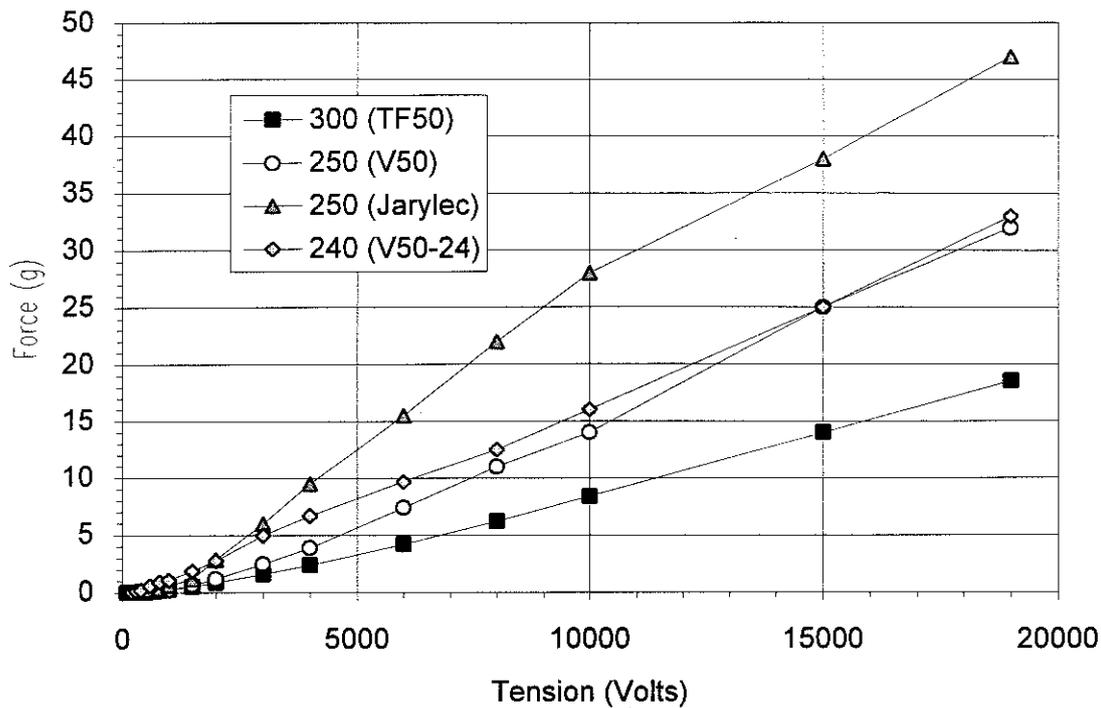
Le fait que pour  $F(47V50) > F(\text{TF50})$  peut être expliqué par le fait que la constante diélectrique de l'huile silicone est supérieure à celle de l'huile TF50 (2,65 contre 2,2). Xu et Liang avait déjà souligné le fait que les fluides ER basés sur de l'huile silicone donnaient de meilleurs résultats que ceux basés sur de l'huile minérale [Xu et Liang, 1991]. Mais le comportement du Jarylec ( $\epsilon_L = 2,6\epsilon_0$ ) reste inexpliqué.



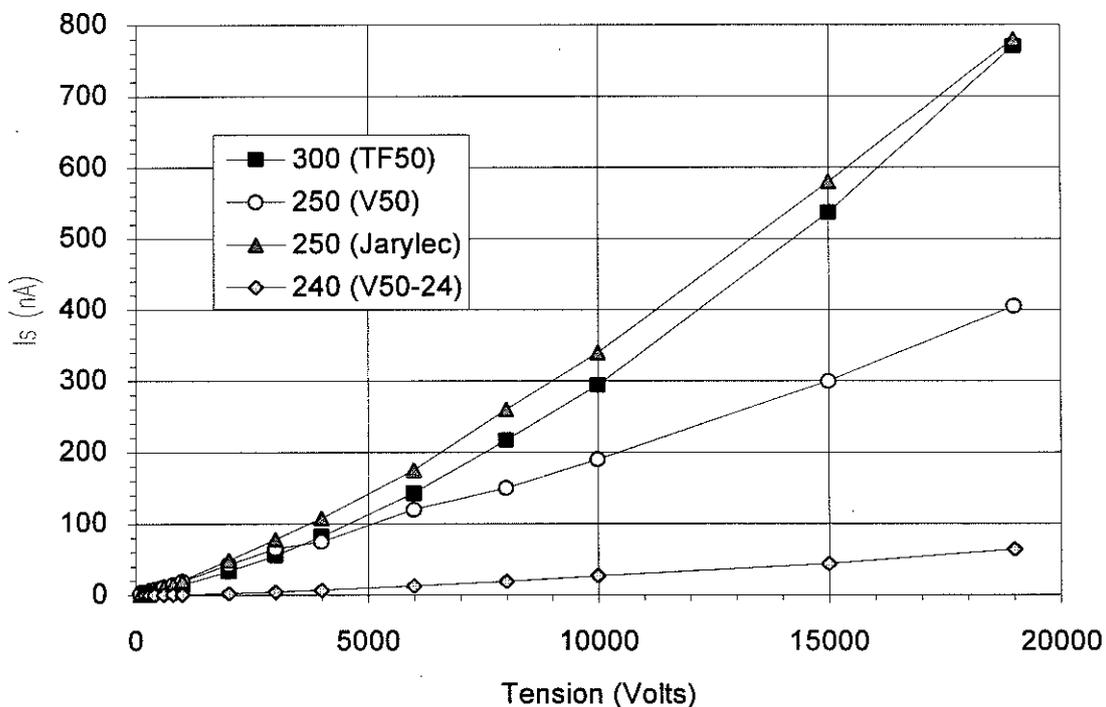
**Figure II.II.33** : Variations de  $F$  en fonction de la tension pour  $\Gamma = 14000$  et pour L2128 dans trois liquides (Jarylec, TF50 et 47V1) et pour L2124 dans 47V50.



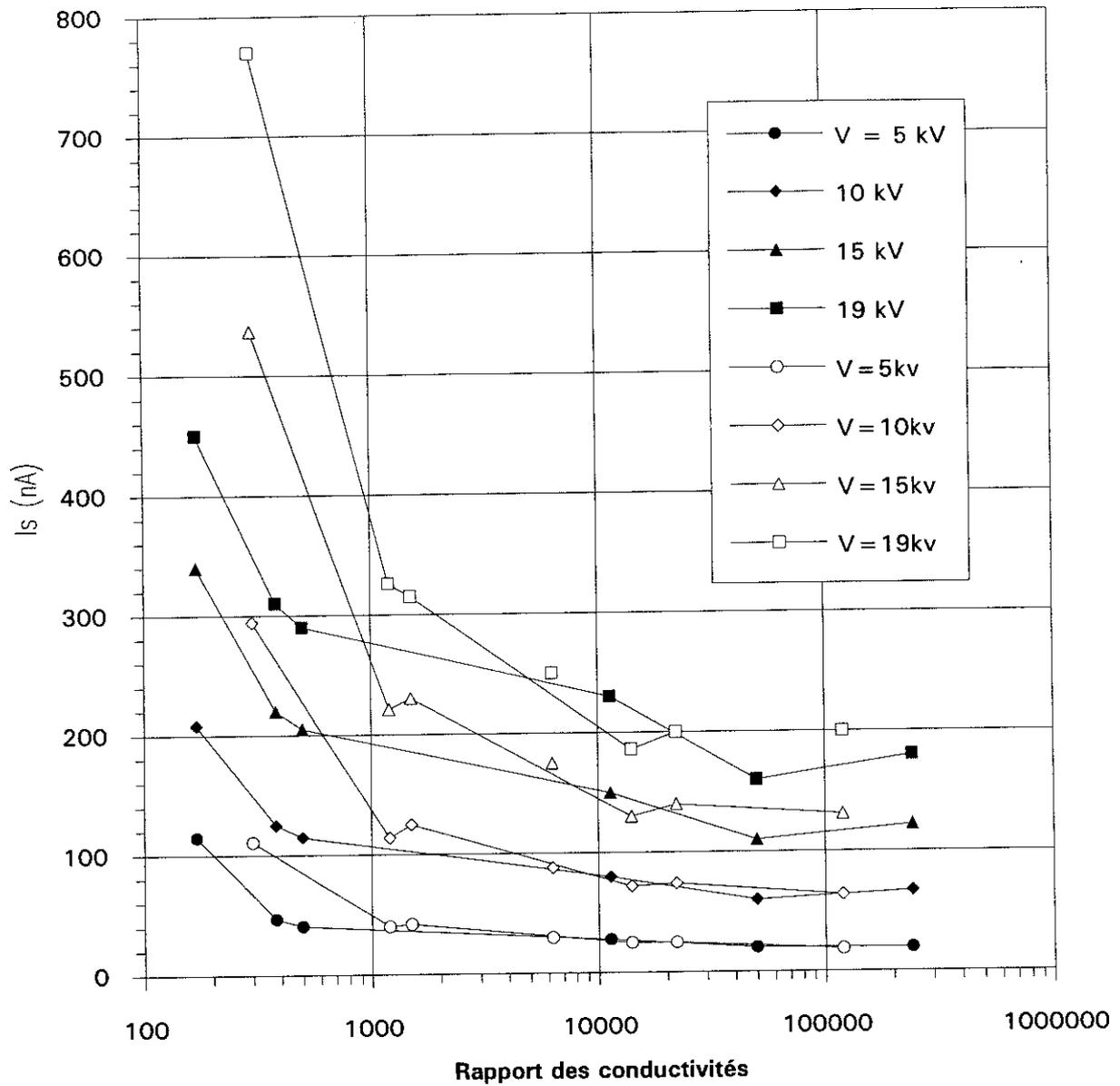
**Figure II.II.34** : Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour  $\Gamma = 14000$  et pour L2128 dans trois liquides (Jarylec, TF50 et 47V1) et pour L2124 dans 47V50.



**Figure II.II.35 :** Variations de  $F$  en fonction de la tension pour  $\Gamma = 250-300$  et pour L2128 dans trois liquides (Jarylec, TF50 et 47V50) et pour L2124 dans 47V50.



**Figure II.II.36 :** Variations de  $I_s$  en fonction de la tension pour  $\Gamma = 250-300$  et pour L2128 dans trois liquides (Jarylec, TF50 et 47V50) et pour L2124 dans 47V50.



**Figure II.H.37** Variations de  $I_s$  en fonction du rapport des conductivités pour TF50/L2128 (blanc) et 47V50/L2128 (noir).

Si nous essayons de comparer les résultats obtenus pour les couples L2128/47V50 et L2124/47V50 pour des  $\Gamma$  équivalents nous obtenons un courant plus faible pour L2124 (ce qui est normal puisque L2124 est moins conducteur que L2128), le rapport des courants est de 4. Le même type de comparaisons pour d'autres valeurs de  $\Gamma$  confirme le fait que le rapport des courants est proche de 4. Ceci pose un problème car les mesures effectuées sur des cylindres de L2128 et L2124 donnaient un rapport des conductivités de l'ordre de 17 et comme le courant  $I_s$  est proportionnel, pour un  $\Gamma$  donné dans un même liquide, à la conductivité du solide; nous devrions trouver un rapport des courants plus important.

Revenons maintenant sur la variation de  $F$  en fonction de  $U^2/I_s$  (relation 5), nous avons :

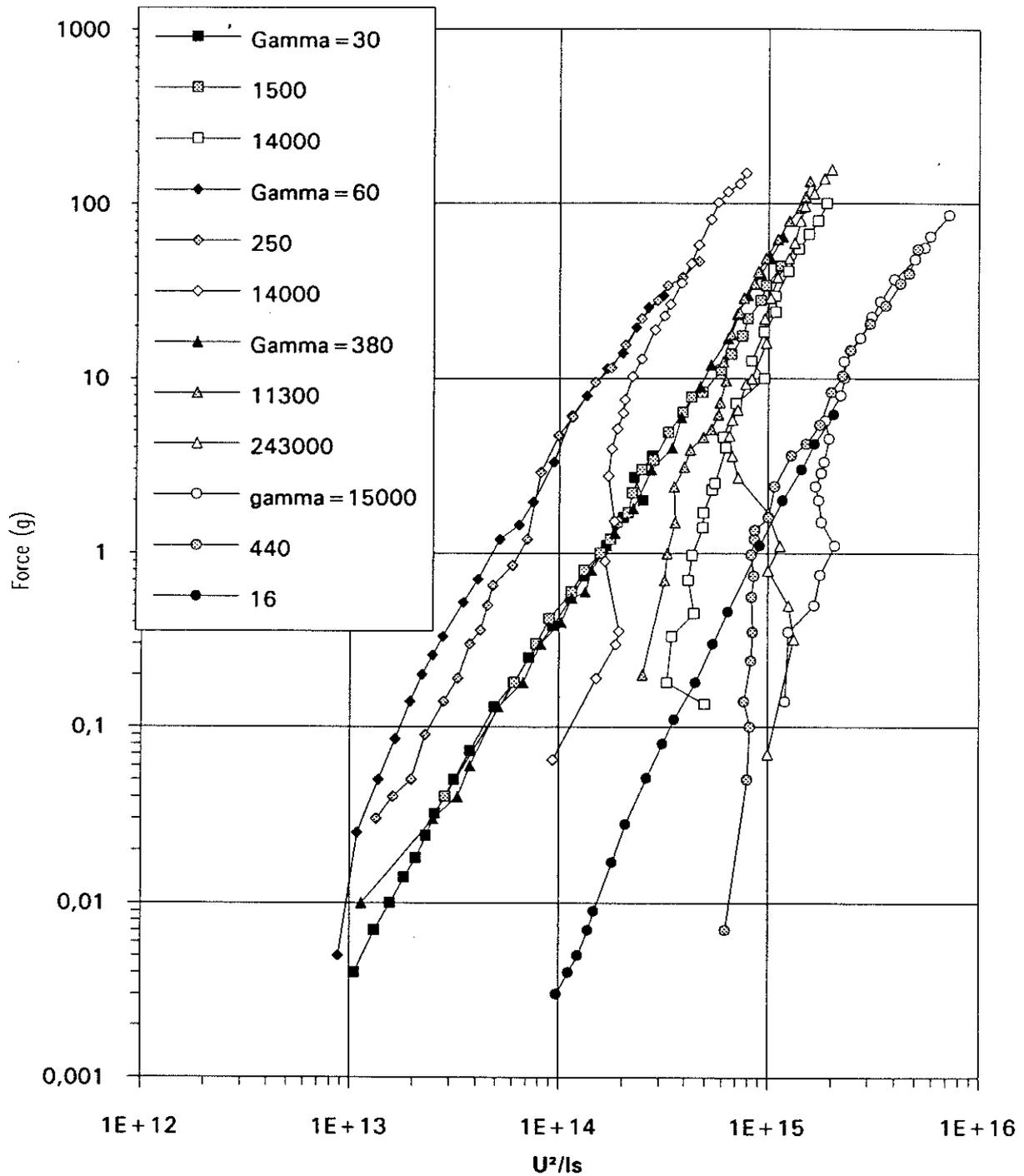
$$F \propto \left( \frac{U^2}{I_s} \right)^2 (\alpha \sigma_s)^2$$

Donc pour un rapport  $U^2/I_s$  donné la force doit être proportionnelle à  $(\alpha \sigma_s)^2$ . Nous avons reporté sur la figure II.II.38 la variation de la force pour L2128 dans le Jarylec, l'huile TF50 et l'huile 47V50 et pour L2124 dans de l'huile silicone. Nous constatons d'une part que pour L2128 dans l'huile 47 V50 ou l'huile TF50 les courbes sont sensiblement superposées ce qui signifie que le produit  $\alpha \sigma_s$  reste constant, ceci est également confirmé par le fait que les courants sont identiques [ $I_s \propto \alpha \sigma_s$ ] (Fig. II.II.37).

Nous remarquons également un rapport de l'ordre de 15 à 20 entre les courbes L2128/(47V50-TF50) et L2124/47V50, ce rapport est cohérent avec le rapport 4 observé sur les courants. Si nous supposons que notre mesure de la conductivité du polymère L2124 est correcte et comme le coefficient  $\alpha$  ne devrait pas changer notablement entre les deux polymères, nous nous trouvons en contradiction avec nos mesures de conductivité des polymères. Une explication possible serait que la conductivité du polymère ait varié et en particulier sous l'effet d'une conductivité de surface qui serait négligeable dans le cas de L2128. Mais devant le manque de données plus complètes nous ne pouvons pas détailler ce point plus amplement.

Nous remarquons d'autre part que les courbes L2128/Jarylec sont au-dessus des autres courbes obtenues avec L2128. Comme il s'agit du même polymère et que la position de la droite est déterminée par le produit  $\alpha \sigma_s$  nous devons conclure qu'au contact du Jarylec la conductivité apparente du polymère est augmentée et qu'il y a eu des réactions physico-chimiques entre le polymère et le Jarylec (et très certainement au niveau de la surface). Ce phénomène peut également expliquer le fait qu'il y ait une évolution dans le temps du comportement du couple L2128/Jarylec (cf. §II.2.4). Il est alors normal d'avoir obtenu à la fois une force et un courant plus importants avec le Jarylec car la conductivité du solide étant plus élevée le rapport  $\Gamma$  est plus grand et nous avons plus de courant. Les comparaisons que nous avons effectuées ne sont plus valables et les valeurs doivent être

Variations de la force en fonction du rapport  $U^2/Is$  pour différents  $\Gamma$  et pour L2128/TF50 (carrés), L2128/Jarylec (losanges), L2128/47V50 (triangles), L2124/47V50 (cercles).



**Figure II.II.38 :**

comparées avec celles obtenues dans les autres liquides pour un rapport  $\Gamma$ , 3 à 4 fois plus grand, soit  $\Gamma \cong 50000$ . L'huile silicone qui a la même constante diélectrique donne effectivement les mêmes forces pour cette valeur de  $\Gamma$  néanmoins le courant  $I_s$  est plus important pour le Jarylec puisque les demi-sphères sont supposées plus conductrices.

## II.4 Etude de fluides ER

Pour examiner dans quelle mesure le modèle de conduction peut être transposé au cas d'un fluide ER, nous avons effectué des mesures à l'aide du rhéomètre décrit dans l'annexe B. Les fluides utilisés sont composés de cellulose dispersée dans du Jarylec, de l'Ugilec, de l'huile TF50 et de l'huile 47V50. Ces mesures ont été effectuées dans le cas d'un régime quasi-statique ( $\dot{\gamma} \cong 0,1 \text{ s}^{-1}$ ) car les mesures en régime dynamique font intervenir des problèmes de structuration et d'interactions hydrodynamiques et reflètent certainement moins bien les interactions purement électrostatiques entre particules. Les valeurs sont mesurées après 3 mn de cisaillement.

A cause de nombreux problèmes rencontrés avec le rhéomètre nous n'avons pu étudier que les suspensions dans lesquelles le liquide était "pur" c'est-à-dire sans addition d'AOT. La reproductibilité des mesures n'a également pas été étudiée. Les comparaisons sont délicates car nous sommes en présence de liquides ayant, dans la plupart des cas, soit une permittivité différente soit une conductivité différente. Nous pouvons néanmoins observer les tendances des comportements des différents fluides. Nous laissons dans un premier temps de côté le cas de l'Ugilec qui avec une permittivité relative de 5 et une conductivité  $\sigma_L \sim 5 \cdot 10^{-10} \text{ S/m}$ , a un comportement très différent des autres liquides. Les fluides ont été préparés quelques heures avant d'être utilisés et ont une fraction volumique de 15%. Nous rappelons les caractéristiques des différents liquides dans le tableau II.II.2 :

Liquide	$\epsilon_L$	$\sigma_L \text{ (S/m)}$
TF50	2,2	$10^{-12}$
47V50	2,6	qq. $10^{-13}$
Jarylec	2,6	qq. $10^{-13}$

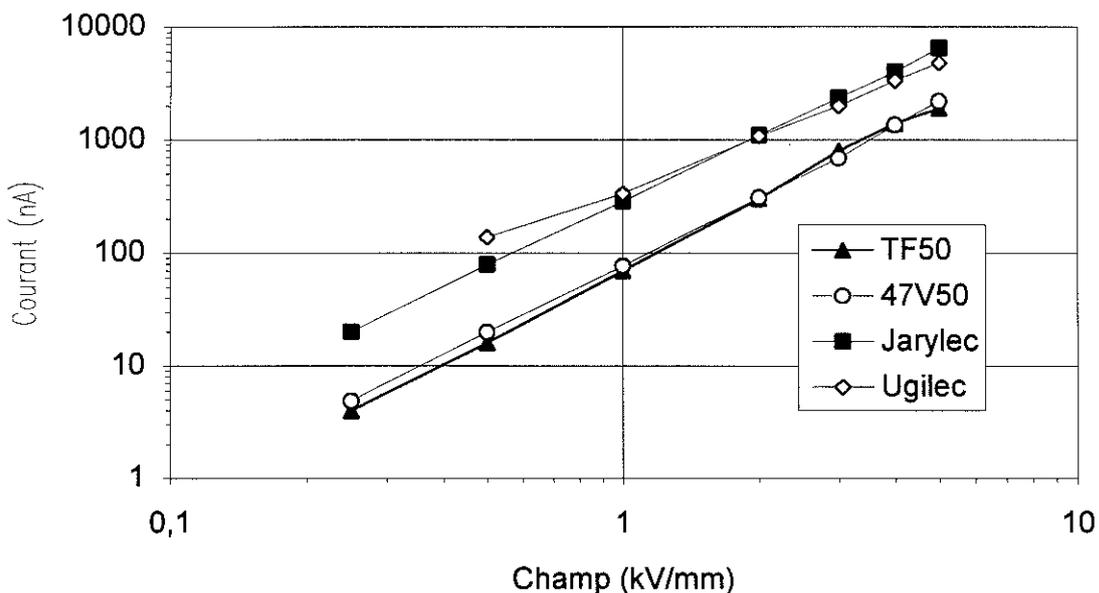
**Tableau II.II.2 :** Caractéristiques des liquides utilisés.

Si nous mesurons le courant qui circule dans la cellule du rhéomètre lorsque celle-ci est remplie uniquement de liquide nous trouvons que le Jarylec et l'huile TF50 présentent la

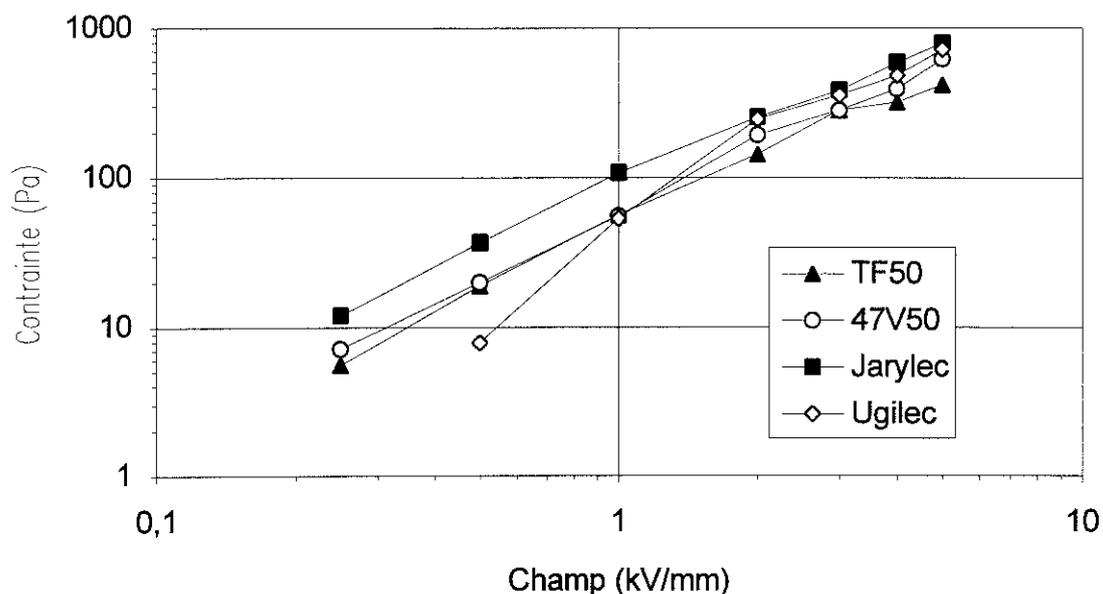
même caractéristique courant-tension alors que l'huile silicone donne pour des champs faibles un courant similaire à celui obtenu avec les autres liquides mais qui au-delà de 1 kV/mm devient supérieur. Ceci peut signifier que la dissociation dans l'huile silicone est plus importante mais plus probablement que les phénomènes d'injection sont plus importants.

Lorsque la cellulose est ajoutée nous obtenons des courants 30 à 100 fois supérieurs à ceux du liquide pur car la cellulose a une conductivité  $\sigma_s$  de quelques  $10^{-9}$  S/m. Il est donc justifié de considérer que la totalité du courant passe à travers les fibres. Le courant varie quadratiquement avec le champ électrique pour les trois fluides (Fig. II.II.39). Si le fait que le courant obtenu pour l'huile silicone et pour l'huile TF50 soient identiques n'est pas surprenant il est curieux qu'il soit plus important avec le Jarylec d'un facteur 3 à 5.

Au niveau de la contrainte nous observons qu'elle prend des valeurs très proches pour les deux huiles pour les champs inférieurs à 1,5 kV/mm et varie suivant une puissance 1,5 en fonction du champ électrique (Fig. II.II.40). Pour les champs plus élevés la contrainte obtenue avec TF50 varie en première approximation linéairement avec le champ alors qu'elle varie suivant une puissance 1,5 pour l'huile 47V50. Pour le Jarylec nous obtenons comme pour l'huile TF50 une diminution de la pente, les valeurs étant plus élevées. Nous avons également examiné la variation de la contrainte maximale avec le fluide à base d'huile TF50, au début du cisaillement et non pas après 3 mn. Nous constatons dans ce cas que la contrainte  $\tau$  varie suivant une puissance 1,5 sur toute la gamme de champ électrique.



**Figure II.II.39** : Variation du courant circulant à travers des fluides ER à base de cellulose (15%) et différents liquides.



**Figure II.II.40** : Variation de la contrainte de cisaillement, dans un régime quasi-statique, de fluides ER à base de cellulose (15%) et différents liquides.

Dans le cas de l'Ugilec le courant obtenu lorsque la cellule est uniquement remplie de liquide est ohmique et supérieur à celui obtenu avec le mélange Ugilec/cellulose. Ceci peut s'expliquer par le fait que la cellulose épure le liquide le rendant plus isolant sans pour cela augmenter notablement sa propre conductivité. Lorsque le champ électrique est faible, le courant tend à être ohmique car les fibres ne doivent pas être totalement formées et une partie importante du courant provient alors du liquide tandis que pour les champs plus élevés le courant augmente sans pour autant atteindre une variation quadratique comme dans le cas des autres liquides. Pour la contrainte nous obtenons une variation très rapide pour les champs faibles puis une variation avec une pente proche de 1 comme pour l'huile TF50 et le Jarylec.

Nous pouvons faire plusieurs rapprochements entre ces mesures et celles réalisées à l'aide des demi-sphères. Premièrement pour la plupart des liquides examinés il y a un changement de pente en ce qui concerne la variation de la contrainte en fonction du champ moyen appliqué. Deuxièmement le courant et la contrainte obtenus avec le Jarylec sont plus élevés que pour les huiles TF50 et 47V50. Troisièmement la contrainte varie beaucoup plus rapidement pour les champs faibles dans le cas de l'Ugilec que dans celui des autres liquides. Néanmoins il est clair que le cas de nos deux demi-sphères, dont la force d'interaction est mesurée en traction, et le cas d'un fluide ER, comportant de nombreuses particules dispersées en taille et en forme et fonctionnant en cisaillement, sont très différents. En particulier, dans le cas des fluides, le courant varie quadratiquement avec le champ ce qui n'est pas le cas avec les demi-sphères.

## II.5 Conclusion

Le modèle de conduction semble, malgré de nombreuses approximations, décrire correctement le comportement de la force d'attraction entre deux demi-sphères. Nous obtenons bien une variation quadratique pour les champs faibles, et pour les rapports des conductivités  $\Gamma$  faibles, et une variation linéaire pour les champs élevés, la valeur du champ pour laquelle les asymptotes se croisent diminuant lorsque  $\Gamma$  augmente. La variation du courant se fait linéairement avec le champ électrique pour les  $\Gamma$  faibles ou pour les  $\Gamma$  moyens et les champs faibles. Ceci est normal puisque  $I_s \propto U\delta$  et  $\delta$  est indépendant de  $U$ . Pour les  $\Gamma$  moyens et les champs forts ou pour les  $\Gamma$  élevés (sauf pour les champs faibles où  $I_s \propto U^2$ ), la variation de  $I_s$  se fait suivant  $U^{3/2}$  [ $F \propto U$  et  $F \propto (U^2/I_s)^2$ ]. Remarquons qu'expérimentalement la corrélation entre les variations de la force et de  $I_s$  n'est pas complète car nous avons quelquefois  $I_s \propto U^{3/2}$  et  $F \propto U^2$ . La variation quasi-universelle de la force suivant une pente 2 avec le rapport  $U^2/I_s$  (sauf pour les  $\Gamma$  importants et les champs faibles) confirme la validité du modèle à deux zones. La position de la droite représentant les points expérimentaux dans les graphes  $F = f(U^2/I_s)$  est déterminée par la conductivité du solide  $F \propto (\alpha\sigma_s U^2/I_s)^2$ .

Les mesures effectuées à l'aide de nos demi-sphères nous ont permis de constater que le paramètre  $\Gamma$  est un paramètre pertinent en ce qui concerne l'interaction entre les particules pour des valeurs  $\Gamma$  allant jusqu'à  $10^5$ . Pour  $\Gamma > 10^4$  avec L2128 ou  $\Gamma > 500$  avec L2124 (ce qui correspond à la même valeur de conductivité du liquide), le courant  $I_s$  entre les demi-sphères semble presque uniquement déterminé par la conductivité du solide ou par l'interface solide/liquide. La nature du liquide a une influence à la fois sur la force d'interaction et sur le courant  $I_s$ . Pour des liquides relativement inertes tels que l'huile TF50 et l'huile silicone, nous trouvons des comportements similaires. Pour des liquides dont la composition chimique est particulière nous trouvons des comportements différents, en particulier dans le cas du Jarylec où la force et le courant obtenus sont plus importants que dans le cas de l'huile silicone alors que les permittivités sont identiques. Il semble évident que des réactions physico-chimiques viennent modifier les processus de conduction. Mais remarquons que pour le Jarylec le modèle de conduction est toujours valable. Dans le cas de l'Ugilec la permittivité est plus forte et les résultats sont qualitativement différents de ceux obtenus avec les autres liquides.

Enfin des corrélations entre les mesures effectuées sur un fluide ER et le comportement de l'interaction sur notre modèle à grande échelle apportent, bien que les conditions soient très différentes, des confirmations nous permettant d'envisager de l'appliquer pour estimer la contrainte seuil des fluides ER.

Néanmoins des points demeurent inexpliqués : quels sont les processus qui conduisent, dans le cas des  $\Gamma$  élevés et les champs faibles, à une variation du courant suivant  $U^2$  et pourquoi n'obtenons-nous pas la valeur attendue pour le rapport des conductivités entre L2128 et L2124 (4 au lieu de 17).

Nous avons jusqu'à présent considéré uniquement l'aspect qualitatif et devant les preuves encourageantes confirmant la validité de notre démarche il nous faut maintenant essayer d'approcher plus quantitativement la force d'interaction entre deux demi-sphères.



## Chapitre III

### Le modèle de conduction : rôle de la conduction volumique du liquide

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'approche de l'interaction entre deux demi-sphères, prenant en compte une zone de contact, permet de décrire qualitativement le comportement de la force d'interaction en fonction du champ appliqué et du rapport des conductivités  $\Gamma$ . Dans le cas où les champs électriques sont faibles, ou pour les  $\Gamma$  faibles, nous avons vu qu'une expression permet d'estimer la valeur de  $\delta$ . Dans le cas des champs élevés nous nous sommes contentés d'un argument qualitatif conduisant à une variation linéaire de la force en fonction du champ sans donner de relation pour  $\delta$ . Nous avons également pu constater que les champs rencontrés dans les fluides électrorhéologiques prenaient des valeurs de plusieurs kV par millimètre et que dans ces conditions nous devons nous trouver dans le cas où la variation de la force entre les demi-sphères doit être linéaire. Il nous faut alors estimer la valeur de  $\delta$  afin d'obtenir une expression nous permettant de réaliser des comparaisons quantitatives.

Pour cela nous devons regarder plus en détail les processus de conduction d'un volume de liquide diélectrique sous l'effet d'un champ électrique intense et en particulier dans ce chapitre la conduction volumique du liquide.

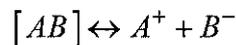
#### III.1 Rappel sur la conduction des liquides en champ élevé

Un premier point à souligner est que la conduction dans les liquides diélectriques, hormis le cas où il y a claquage ou préclaquage du liquide, n'est assurée que par des espèces ioniques et non pas par des électrons. Le second point est qu'il existe dans les liquides non polaires ou faiblement polaires deux processus conduisant à la création d'ions [Denat, 1982 - Gosse *et al.*, 1985]. Le premier est dû à un équilibre entre la dissociation de paires d'ions dans

les liquides non-polaires et la recombinaison des ions ainsi créés. Le second processus est la création d'ions au niveau des électrodes (injection). Le cas de l'injection sera abordé dans le chapitre suivant et nous allons examiner le cas où la conduction provient de la dissociation d'espèces neutres dans le volume du liquide.

### **III.1.1 Conduction volumique :**

Si nous considérons l'équilibre entre la dissociation de paires d'ions ( $A^+B^-$ ) en ions  $A^+$  et  $B^-$  et la recombinaison de ces ions :



on a la relation  $k_D \cdot c = k_R \cdot n^2$  où  $k_D$  est la constante de vitesse de dissociation,  $k_R$  la constante de vitesse de recombinaison,  $c$  la concentration de l'espèce dissociable et  $n$  la concentration volumique de charges ( $C/m^3$ ).  $k_R$  a pour expression :  $k_R \approx \frac{2K}{\epsilon_L}$  ( $K$  est la mobilité des ions supposée la même pour les deux types) [Langevin, 1903]. La conductivité  $\sigma_L$  du liquide est alors donnée par :

$$\sigma_L(0) = \sigma_L = (K^+ + K^-)n = 2K \sqrt{\frac{ck_D}{k_R}}$$

La dissociation d'un électrolyte dans un solvant non polaire est déterminée par l'interaction coulombienne entre les ions. La constante de vitesse de dissociation  $k_D$  est proportionnelle au terme  $\exp(-W/kT)$  où  $W$  est l'énergie électrostatique d'association entre deux ions ( $W > 0$ ) [Gosse *et al.*, 1985]. La présence d'un champ électrique va diminuer la barrière de potentiel s'opposant à la dissociation des paires d'ions d'une quantité  $\Delta W$ . La constante  $k_D$  est donc multipliée par  $\exp(\Delta W/kT)$ . Onsager a effectué un traitement complet du problème et obtient une variation de la constante de dissociation  $k_D$  en fonction du champ qui peut s'écrire [Onsager, 1934] :

$$k_D(E) = k_D(0) f(E / E_c)$$

où  $f(E / E_c)$  s'exprime à l'aide d'une fonction de Bessel modifiée  $f(x) = \frac{2I_1(x^{1/2})}{x^{1/2}}$  et  $E_c$  est un champ caractéristique donné par  $E_c = \frac{\pi\epsilon_L}{e} \left( \frac{kT}{e} \right)^2$  ( $e$  : charge électrique élémentaire).

Pour des valeurs  $x \gg 1$ ,  $f(x)$  peut être approchée asymptotiquement par [Denat, 1982] :

$$f(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{\exp(\sqrt{x})}{(x)^{3/4}}$$

La conductivité du liquide  $\sigma_L(E)$  lorsque la dissociation est renforcée par le champ électrique est donc égale à :

$$\sigma_L(E) = 2K \sqrt{c \frac{k_D(E)}{k_R}} = \sigma_L(0) \sqrt{f(E/E_c)} \quad (6)$$

Nous venons de voir que la conductivité du liquide était déterminée par un équilibre association-dissociation d'espèces neutres. L'équilibre thermodynamique suppose que les ions ont le temps de se recombiner dans le volume de liquide. Or sous l'effet du champ électrique  $E$  ils se déplacent avec une vitesse  $u = KE$  et selon la constante de temps de l'équilibre association-dissociation, ils peuvent atteindre une électrode avant de se recombiner. C'est la conséquence sur le courant de cet état hors équilibre que nous allons maintenant examiner.

### III.1.2 Phénomène de saturation du courant :

Considérons des paires d'ions entre deux électrodes planes qui se dissocient et se recombinent avec une constante de temps  $\tau = \epsilon_L / \sigma_L$ . Si la tension appliquée est telle que le temps de transit des ions entre les deux électrodes ( $t \approx d^2 / KV$ ) est supérieur à  $\tau$ , les ions se dissocient et se recombinent dans le liquide, l'équilibre est seulement perturbé dans des couches proches des électrodes et ayant une épaisseur de l'ordre de la distance  $\lambda \sim \tau KE$  parcourue par les ions durant le temps  $\tau$  (Fig. II.III.1). Dans ce cas la conduction est ohmique et  $j = \sigma_L E$ . Dans le cas contraire la quasi-totalité des ions ont le temps d'atteindre une des électrodes avant de se recombiner avec un ion de signe contraire. La conduction du liquide est alors déterminée par le nombre d'ions présents dans le volume.

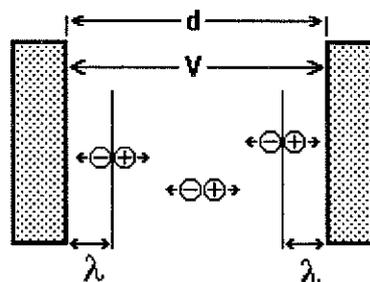


Figure II.III.1 : Représentation schématique des couches de conduction.

La saturation du courant est donc atteinte lorsque tous les ions créés au sein du liquide atteignent l'électrode de signe opposé. Le courant de saturation a donc comme valeur :

$$j_{sat} = k_D \cdot c \cdot d$$

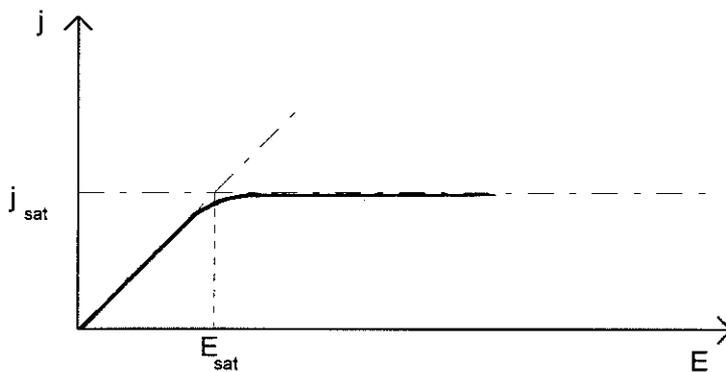
En supposant que le champ E ne modifie pas la constante de dissociation  $k_D$  nous obtenons à l'aide des relations établies précédemment :

$$j_{sat} = \frac{\sigma_L^2}{2K\epsilon_L} d \quad (7)$$

Le courant circulant dans le liquide reste donc constant pour les champs supérieurs à un champ de saturation  $E_{sat}$  qui, par définition, est le champ correspondant à l'intersection des courbes représentant le courant ohmique  $j = \sigma_L E$  et le courant de saturation (Fig. II.III.2). Nous obtenons comme expression pour le champ de saturation :

$$E_{sat} = \frac{\sigma_L}{2K\epsilon_L} \cdot d \quad (8)$$

Le tableau II.III.1 donne la valeur du champ de saturation (en V/mm) pour différentes valeurs de d et différentes valeurs de  $\sigma_S$  avec  $\epsilon = 2 \cdot 10^{-11}$  F/m et  $K = 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/Vs.



**Figure II.III.2 :** Variations du courant dans la phase ohmique puis dans la phase de saturation.

$\sigma_L$ (S/m) \ d ( $\mu$ m)	1	10	100	1000
$10^{-13}$	0,0025	0,025	0,25	2,5
$10^{-12}$	0,025	0,25	2,5	25
$10^{-11}$	0,25	2,5	25	250
$10^{-10}$	2,5	25	250	2500

**Tableau II.III.1 :** Valeurs du champ de saturation en V/mm.

Si nous prenons le cas de l'huile TF50 pour laquelle  $\sigma_L \sim 10^{-12}$  S/m nous obtenons pour notre distance inter-électrodes de 14 mm un champ de saturation de 350 V/mm ce qui correspond à une tension de 5 kV. Nous aurons donc toujours saturation entre les sphères, quel que soit x entre 0 et R, pour des tensions supérieures à 5 kV. D'autre part dans le cas des fluides ER où les particules ont des tailles typiques de 10  $\mu$ m, la saturation est atteinte pour

des champs de quelques V/mm, ce qui sera toujours vérifié dans la pratique. La saturation va donc intervenir dans notre expérience avec des demi-sphères suivant la valeur du rapport  $\Gamma$  mais dans le cas des fluides ER il semble qu'elle est obligatoire.

Le nombre d'ions assurant le passage du courant est donné par la valeur de la constante de dissociation qui dépend du champ électrique par l'intermédiaire du phénomène de dissociation renforcée. Le courant de saturation s'écrit alors :

$$j_{sat} = k_D(E) \cdot c \cdot d = \frac{\sigma_L^2 \cdot d}{2K\epsilon_L} \cdot f(E/E_c) \quad (9)$$

## III.2 Modèle de conduction pour les champs élevés

Dans ce paragraphe nous allons estimer le rapport  $R/\delta$  en considérant dans un premier temps que le champ renforce fortement la constante de dissociation mais qu'il y a un quasi-équilibre entre dissociation et recombinaison. Dans un deuxième temps nous prendrons en compte la saturation du courant dans le liquide correspondant alors à une situation hors d'équilibre (la recombinaison est négligeable).

### III.2.1 Conductivité renforcée (cas A) :

Pour les champs importants nous pouvons donc écrire que la conductivité du liquide est donnée par la relation :

$$\sigma_L(E) = \sigma_L(0) \sqrt{f(E/E_c)} \cong \sigma_L(0) \left[ \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{\exp(\sqrt{E/E_c})}{(E/E_c)^{3/4}} \right]^{1/2}$$

Si nous reprenons les relations suivantes établies dans le chapitre II :

$$dC_L \cong 2\pi\sigma_L R \frac{dx}{x}$$

$$C_s = \alpha \cdot \sigma_s \cdot \delta$$

$$F \cong \pi\epsilon_L U^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

nous pouvons à nouveau intégrer  $dC_L$  entre  $x = \delta$  et  $x = R$  avec la nouvelle expression de la conductivité du liquide. Si la dissociation n'est pas réellement renforcée pour des valeurs de  $x$  proche de  $R$  l'approximation que nous faisons est de même nature que pour l'expression  $y = \delta^2/R$  et nous pouvons la négliger. En égalant  $C_L$  et  $C_S$  nous arrivons à une nouvelle expression de  $R/\delta$  de la forme :

$$\frac{R}{\delta} \cong \left( \frac{2E_c}{E_o} \right)^{1/2} \ln \left( \frac{\alpha\Gamma}{4\pi} \cdot \left( \frac{2}{\pi} \right)^{-1/4} \left( \frac{2E_o}{E_c} \right)^{7/8} \left( \frac{R}{\delta} \right)^{3/4} \right) \quad (10)$$

Ceci nous conduit à une nouvelle expression de la force d'interaction entre les demi-sphères pour les champs électriques élevés :

$$F \cong 8\pi R^2 \varepsilon_L E_c E_o [Ln(\lambda \cdot \Gamma)]^2 \quad (11)$$

où  $\lambda$  représente les autres termes du logarithme. Dans ce cas nous voyons que la variation de la force est quasi-linéaire avec le champ appliqué et que la dépendance en  $\Gamma$  se fait par l'intermédiaire d'un terme logarithmique.

### **III.2.2 Saturation du courant (cas B) :**

L'estimation de la distance  $y$  entre les deux demi-sphères pour  $x = \delta$  nous donne des valeurs de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Si nous revenons au tableau II.III.1 nous constatons que pour une valeur de  $\sigma_L$  proche de celle de  $\sigma_S$  ( $10^{-8}$  S/m) le champ de saturation est de 25 kV/mm. Cette valeur est plus faible que celle que nous avons estimée dans le chapitre II pour  $E_{\text{max}}$ . nous pouvons alors supposer qu'au niveau de la zone de contact il y a saturation du courant dans le liquide ainsi que pour une zone, au-delà de la zone de contact, plus ou moins importante suivant les valeurs de la tension et de  $\Gamma$ .

Nous pouvons reprendre l'estimation de la conductance du liquide en considérant que  $C_L = I/U$  et en calculant le courant  $I$  qui circule entre les deux demi-sphères en dehors de la zone de contact. En égalant  $C_L$  et  $C_S$  nous obtenons comme nouvelle expression de  $R/\delta$  [Boissy *et al.*, 1996] :

$$\frac{R}{\delta} \cong \sqrt{\frac{E_c}{2E_o}} \cdot \ln \left[ \frac{2K\alpha E_o \varepsilon_L \cdot \Gamma^2}{\pi \sigma_S R} \left( \frac{2}{\pi} \right)^{-1/2} \left( \frac{2E_o}{E_c} \right)^{5/4} \left( \frac{R}{\delta} \right)^{11/2} \right] \quad (12)$$

Ceci nous conduit à l'expression de la force d'interaction entre les demi-sphères pour les champs électriques élevés qui est donnée par :

$$F \cong 2\pi R^2 \varepsilon_L E_c E_o \left[ \text{Ln}(\lambda' \Gamma^2) \right]^2 \quad (13)$$

Nous retrouvons une variation de la force quasi-linéaire avec le champ appliqué.

### III.3 Comparaison avec l'expérience

Nous pouvons maintenant comparer d'une manière quantitative les résultats expérimentaux obtenus à l'aide de nos demi-sphères et les valeurs de la force données par le modèle de conduction en considérant qu'il y a dans un cas équilibre entre dissociation renforcée et recombinaison (A) (§ III.2.1) et dans un autre cas dissociation renforcée et saturation du courant dans le liquide (B) (§ III.2.2).

La première étape consiste à déterminer la valeur du coefficient  $\alpha$ . Nous le faisons à partir de nos résultats expérimentaux en posant :

$$C_s = \frac{I_s}{2U} = \alpha \sigma_s \delta$$

la détermination de  $\delta$  se fait également expérimentalement à partir de l'expression

$$F \cong \pi \varepsilon_L U^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

Il nous faut faire ici une remarque, nous considérons que seulement la moitié du courant passe à travers la zone de contact de rayon  $\delta$  car nous avons écrit que  $C_s = C_L$  et  $I_s = U(C_s + C_L)$ . Néanmoins le terme logarithmique étant très grand ( $> 10^5$ ) l'erreur que l'on peut commettre sur la détermination de  $\alpha$  (au maximum un facteur deux) n'a qu'une faible influence sur la valeur de  $R/\delta$ . De plus dans le cas B (avec saturation), la mobilité des ions intervient et nous sommes également obligés de faire une approximation; nous prendrons la valeur  $K = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{Vs}$  relative à l'huile minérale TF50.

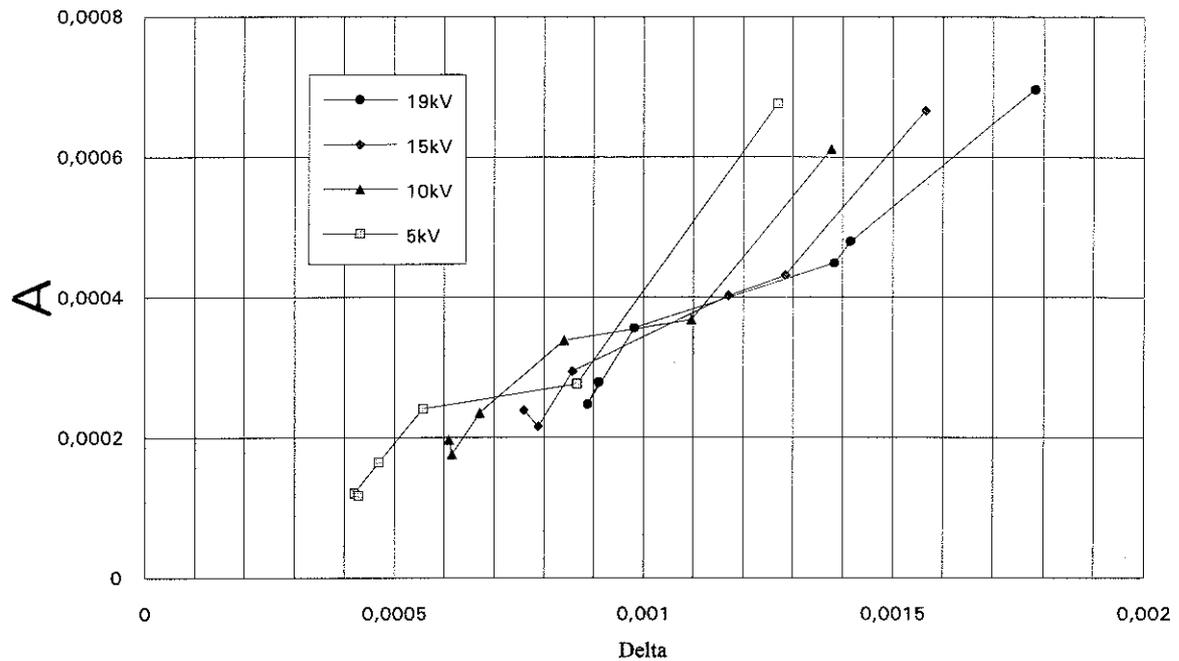
Nous considérons uniquement les points correspondant aux tensions supérieures à 5 kV ( $E > 0,35 \text{ kV/mm}$ ); c'est à dire lorsque la force varie linéairement avec  $E_o$ .

Les mesures effectuées dans l'huile 47V50 ( $\Gamma = 170, 380, 500, 11300, 50000$  et  $243000$ ) nous donnent un coefficient  $\alpha$  de 0,33; pour l'huile TF50 ( $\Gamma = 30, 45, 300, 1500, 14000$  et  $22000$ ) nous trouvons que  $\alpha \cong 0,31$  (Fig. II.III.3). Ces résultats que nous pouvons considérer comme équivalents nous montrent, qu'aussi bien la présence d'AOT dans le liquide que le liquide lui même, ne viennent pas modifier la conductivité du polymère dans le cas des couples L2128/TF50 et L2128/47V50.

Dans le cas de L2124/47V50 nous trouvons un coefficient  $\alpha \cong 1,1$  en prenant une valeur de  $\sigma_s \sim 10^{-9}$  S/m. Nous avons vu dans le chapitre précédent que le rapport des conductivités entre les deux polymères ne semblait pas être vérifié, il est donc normal de trouver un coefficient  $\alpha$  différent. En fait le paramètre important est le produit  $\alpha\sigma_s$ . En effet dans les expressions de  $R/\delta$  et de  $I_s$  apparaît soit  $\alpha\sigma_s$  soit le produit  $\alpha\Gamma$  et donc  $\alpha\sigma_s/\sigma_L$ . Si nous prenons, pour une même valeur de  $I_s$ , une valeur de  $\sigma_s$  différente,  $\alpha$  sera différent mais le produit  $\alpha\sigma_s$  restera constant ainsi que la valeur de  $R/\delta$ , la seule chose qui sera modifiée sera la valeur du rapport  $\Gamma$ .

Dans le cas du Jarylec nous attendions un coefficient  $\alpha$  proche de 0,32 (comme dans le cas des huiles 47V50 et TF50) mais nous trouvons cette valeur uniquement pour la mesure à  $\Gamma = 3400$  effectuée après les autres et où nous avons vu que la force et le courant  $I_s$  étaient plus faibles; les autres mesures nous donnent une valeur comprise entre 0,8 et 0,9. Il semble donc que la nature du liquide ait une influence sur la conductivité  $\sigma_s$  apparente du polymère. Si nous supposons que le Jarylec, du moins dans les premiers temps où il est en contact avec le polymère, augmente sa conductivité, il est normal d'obtenir une force plus importante ( $\Gamma$  plus grand) et un courant plus important. Il nous faut conclure que, dans le cas du Jarylec, le comportement a été profondément modifié. Le fait qu'après plusieurs semaines les résultats obtenus avec le couple L2128/Jarylec redeviennent similaires à ceux obtenus avec l'huile TF50 et l'huile 47V50 reste inexplicé.

La comparaison des résultats obtenus avec les différents couples polymère/liquide est donc délicate car nous ne pouvons pas être sûrs qu'ils correspondent au même  $\Gamma$ . Les comparaisons que nous avons effectuées précédemment sont donc à regarder avec prudence hormis pour L2128/47V50 et L2128/TF50 qui semblent avoir un comportement similaire.



**Figure II.III.3 :** Variation du rapport  $A = I_s/(2U\sigma_s)$  en fonction de  $\delta$  pour 47V50. La pente donne le coefficient  $\alpha$ .

Les valeurs des constantes diélectriques et des permittivités que nous considérons ainsi que les valeurs de  $\alpha$  que nous avons obtenues sont résumées dans le tableau II.III.2, le cas de l'Ugilec n'est pas considéré :

Couples Solide/liquide	$\epsilon_L/\epsilon_0$	$E_c$ (kV/mm)	$\alpha$
L2128/Jarylec	2,6	0,29	~ 0,85*
L2128/TF50	2,2	0,245	0,31
L2128/47V50	2,65	0,295	0,33
L2124/47V50	2,65	0,295	1,1

**Tableau II.III.2 :** \* dépend de la mesure considérée

Les résultats obtenus à l'aide du modèle de conduction, cas A et B, et les points expérimentaux sont présentés pour  $U = 5, 10, 15$  et  $19$  kV sur les figures II.III.4 à II.III.7. Pour L2128/Jarylec et L2124/47V50 les  $\Gamma$  utilisés sont ceux calculés initialement sans tenir compte de la modification probable de la conductivité "apparente" des polymères. Cependant ceci ne modifie pas la position relative des courbes expérimentales et théoriques (A et B) et une correction aurait simplement pour conséquence une translation suivant l'axe des abscisses.

La comparaison des points expérimentaux et des valeurs données par le modèle de conduction A nous montre qu'il estime correctement à la fois l'amplitude de la force mais aussi sa variation en fonction du rapport des conductivités pour des  $\Gamma$  faibles. Les courbes obtenues avec le modèle B se situent au-dessus ce qui est normal car la saturation du courant implique une diminution de la conductance du liquide par rapport à celle estimée par le premier modèle. Le modèle B donne des valeurs supérieures aux valeurs expérimentales mais il décrit bien la variation de la force en fonction du rapport des conductivités lorsque ces rapports sont importants. Schématiquement les deux modèles se complètent, nous avons une bonne corrélation avec le modèle A lorsque les  $\Gamma$  sont faibles puis avec le modèle B lorsque les  $\Gamma$  sont importants. Ceci semble logique car plus les  $\Gamma$  sont importants plus la conductivité du liquide est faible, ce qui donne un champ de saturation plus faible également; la saturation est totale pour les  $\Gamma$  grands. Nous pouvons vérifier cela en considérant, pour le couple L2128/TF50, les valeurs des différents champs que nous avons évoqués jusqu'à présent (Tableau II.III.3). Les champs  $E(\delta)_A$  et  $E(\delta)_B$  sont les champs donnés par nos deux modèles calculés en  $x = \delta$  et correspondant au champ dans la zone de contact. A partir du champ dans la zone de contact  $E(\delta)_{exp}$  déterminé expérimentalement ( $E=UR/\delta^2$  et  $\delta$  est obtenu à partir de la valeur de la force) nous estimons la conductivité du liquide  $\sigma_L(\delta)$  dans cette zone en supposant que l'on est dans le cas où il y a équilibre (cas A). En calculant la distance  $y$  entre les deux demi-sphères pour  $x = \delta$  nous pouvons calculer à l'aide de la relation (8) le champ de saturation  $E_{sat}$  pour  $x = \delta$ , ce champ est une borne supérieure du champ de saturation dans la zone de contact (les valeurs sont données pour 19 kV).

$\Gamma$	$E(\delta)_A$	$E(\delta)_B$	$E(\delta)_{exp}$	$\delta$ ( $\mu\text{m}$ )	$y$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_L(\delta)$	$E_{sat}$
22000	110	152	135	990	140	$8,1 \cdot 10^{-9}$	28
14000	100	138	123	1040	154	$7,7 \cdot 10^{-9}$	30
1500	57	77	54	1570	350	$2,3 \cdot 10^{-9}$	20
300	33	39	23	2420	835	$1,1 \cdot 10^{-9}$	23

**Tableau II.III.3** : Récapitulatif des différents champs pour L2128/TF50 et  $U = 19$  kV. Les champs sont donnés en kV/mm et les conductivité en S/m.

Nous pouvons constater plusieurs choses. Premièrement la conductivité du liquide reste inférieure à celle du solide, au moins jusqu'à des  $\Gamma$  de l'ordre de 25000. Au-delà il n'est pas impossible que  $\sigma_L \sim \sigma_S$  mais il nous faut remarquer que le champ dans la zone de contact sera supérieur à 150 kV/mm sur 100  $\mu\text{m}$  et de tels champs entraîneraient des décharges

partielles ou des claquages dans beaucoup de liquides diélectriques, limitant ainsi le champ électrique à une valeur maximale (nous reviendrons sur ce point dans le chapitre suivant).

Deuxièmement nous avons fait une approximation en considérant que le champ électrique était négligeable dans les particules et en appliquant la relation de la pression électrostatique pour un conducteur. L'expression de la densité de force qui s'exerce sur les charges  $q_s$  à la surface d'un matériau dans un cas plus général est pour une unité de surface donnée par [Purcell, 1973] :

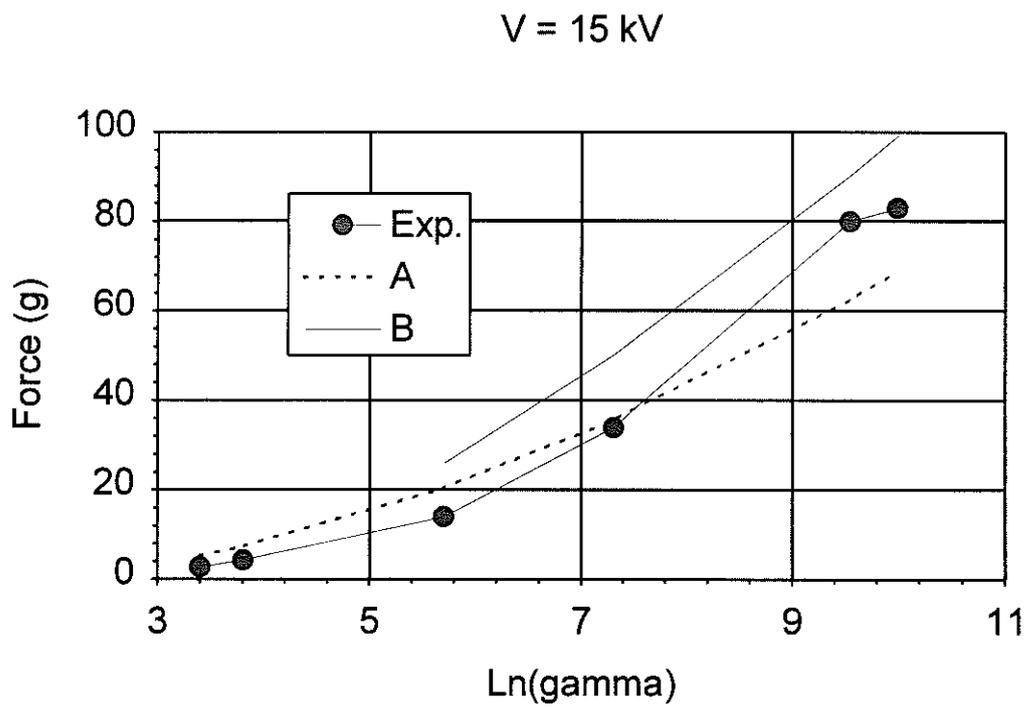
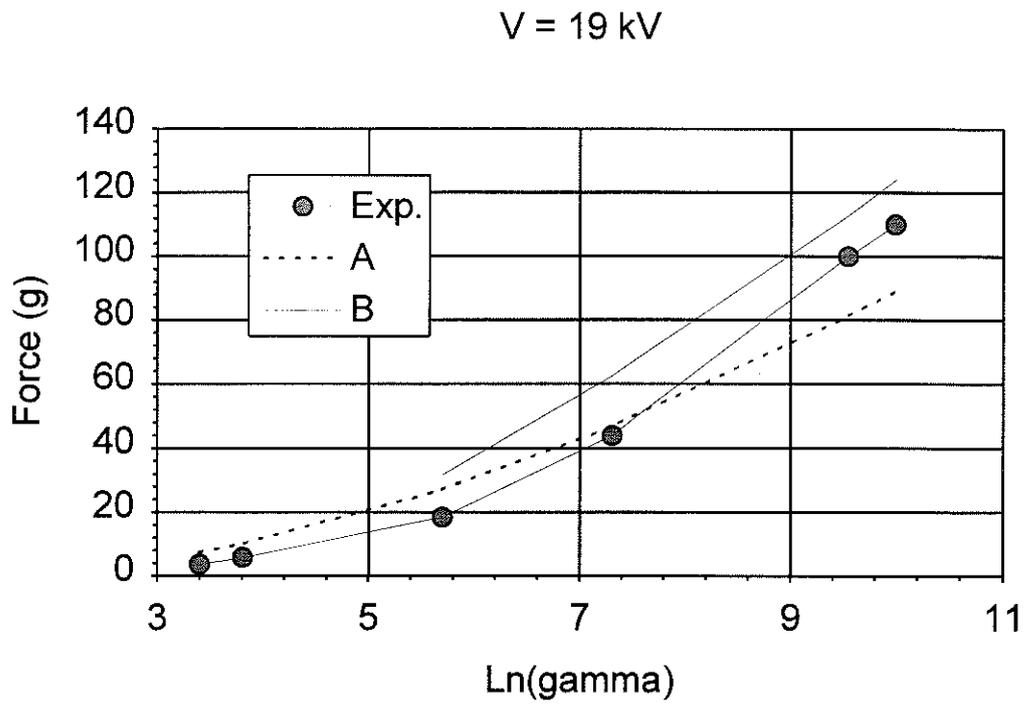
$$F = \frac{1}{2}(E_{\text{ext}} + E_{\text{int}})q_s$$

Dans notre cas si la conductivité du liquide devient proche du solide la charge  $q_s$  tend vers zéro ainsi que la force. Notre approximation tend donc à surestimer la force d'interaction.

Enfin nous constatons que le champ électrique de saturation reste à peu près constant et est très inférieur à  $E(\delta)$  pour les  $\Gamma$  importants. Cependant pour les  $\Gamma$  faibles les deux champs deviennent comparables, il n'y a donc plus forcément de saturation du courant dans la zone de contact. Cela explique le fait que le modèle A donne de bons résultats pour les  $\Gamma < 3000$ .

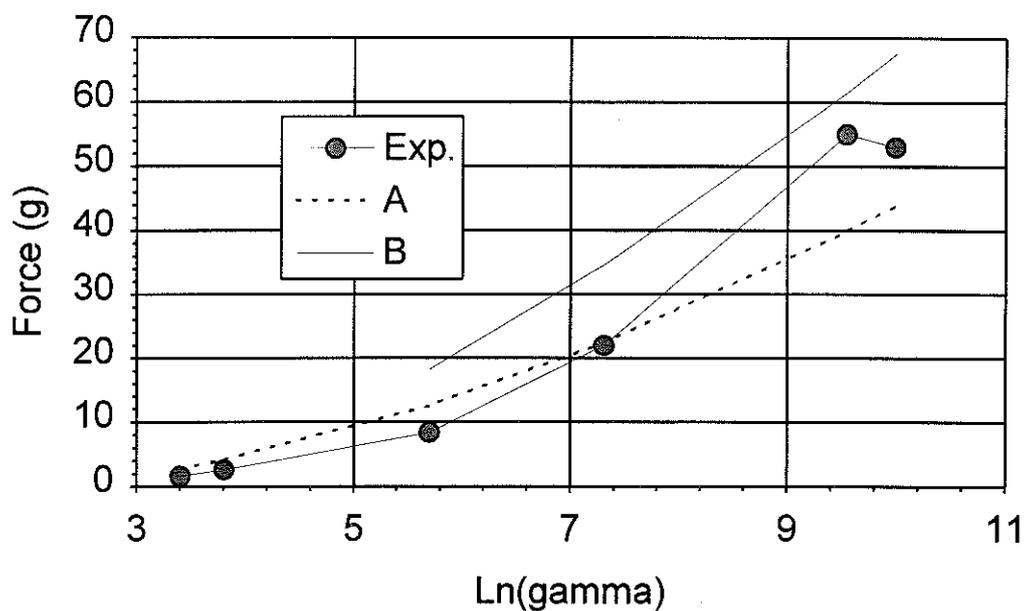
Dans le cas de l'huile 47V50 avec L2128 et L2124, la force tend à saturer pour les  $\Gamma$  élevés ce qui implique que les processus assurant le passage du courant sont différents de ceux que nous avons envisagés. Nous aborderons ce point dans le chapitre suivant.

Il semble également que la nature du liquide est une influence sur la force et le courant en particulier dans le cas de l'Ugilec et du Jarylec; mais remarquons que pour le Jarylec le modèle de conduction donne de bonnes prédictions. Une première raison est liée à la nature des molécules du liquide qui peuvent avoir une plus ou moins grande affinité avec celles constituant le solide (dans notre cas également avec les plastifiants contenus dans le polyamide). Une deuxième raison est liée au processus électrochimique conduisant à des phénomènes d'injection. Enfin une troisième raison est liée à la permittivité du liquide, la force d'interaction étant proportionnelle à  $\epsilon_L$ . Il nous est difficile de différencier l'influence que peuvent avoir les trois points que nous venons d'énoncer sur la force d'interaction car nous avons peu de mesures et nous ne pouvons pas pour l'instant aborder ce point plus dans le détail.

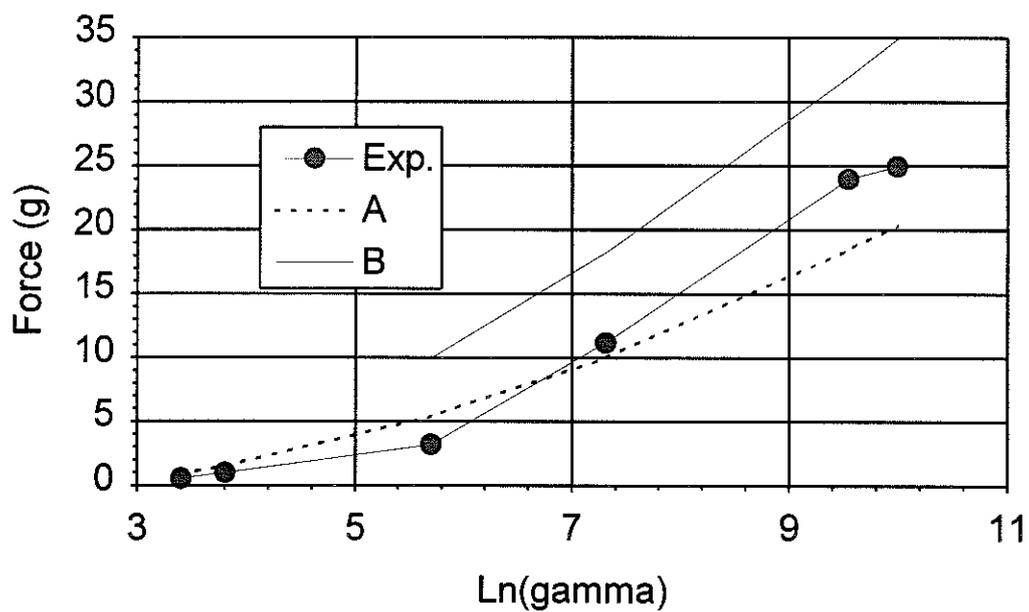


**Figure II.III.4** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2128/TF50.

V = 10 kV

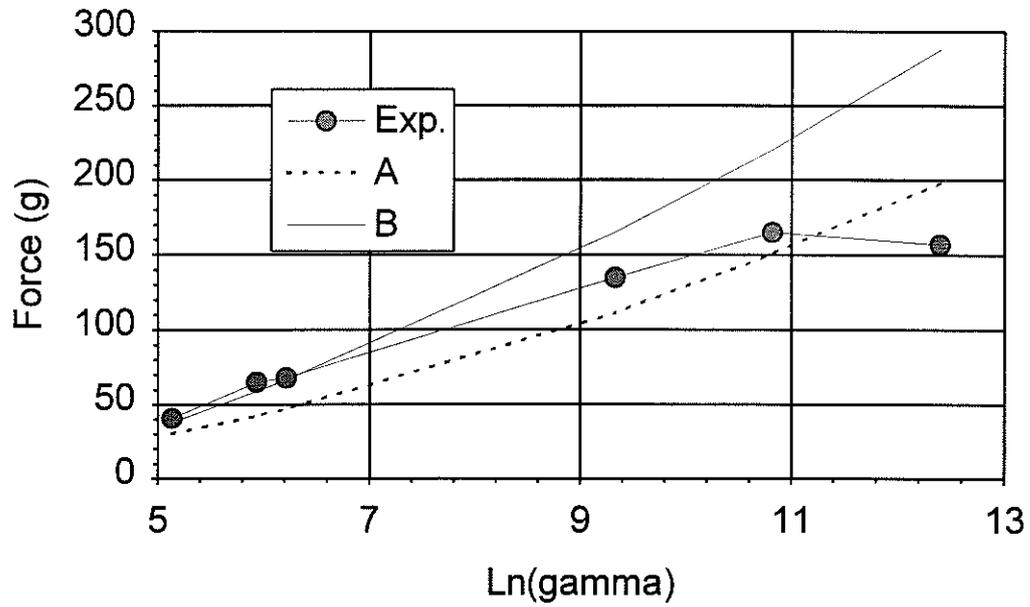


V = 5 kV

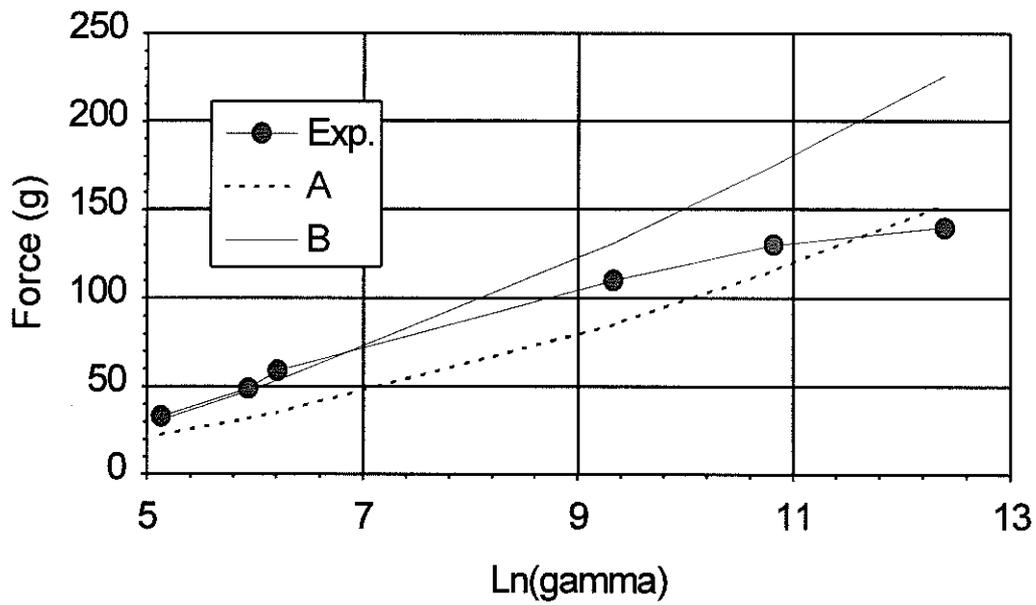


**Figure II.III.4 (suite)** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2128/TF50.

V = 19 kV

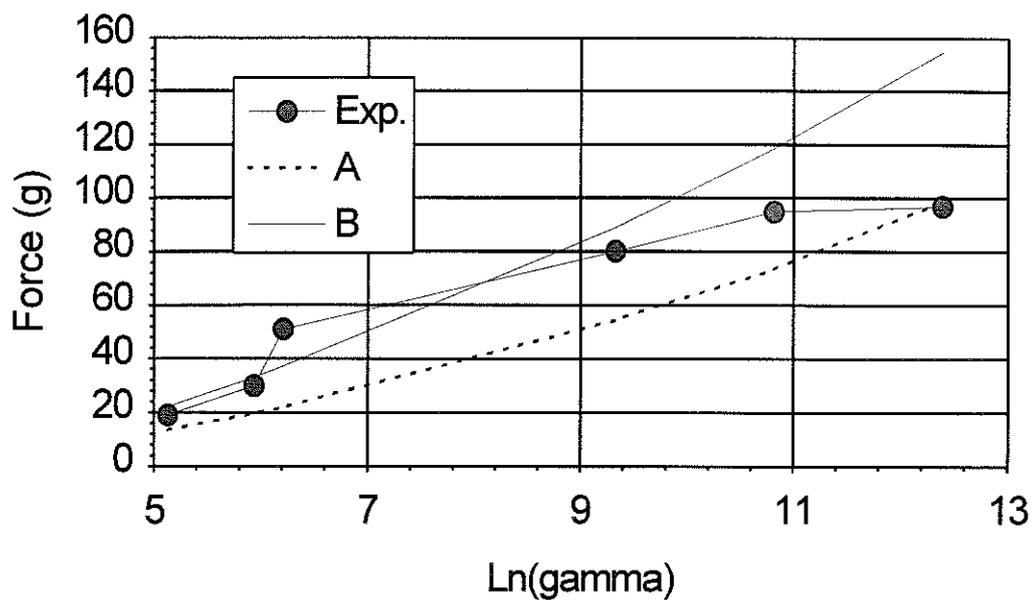


V = 15 kV

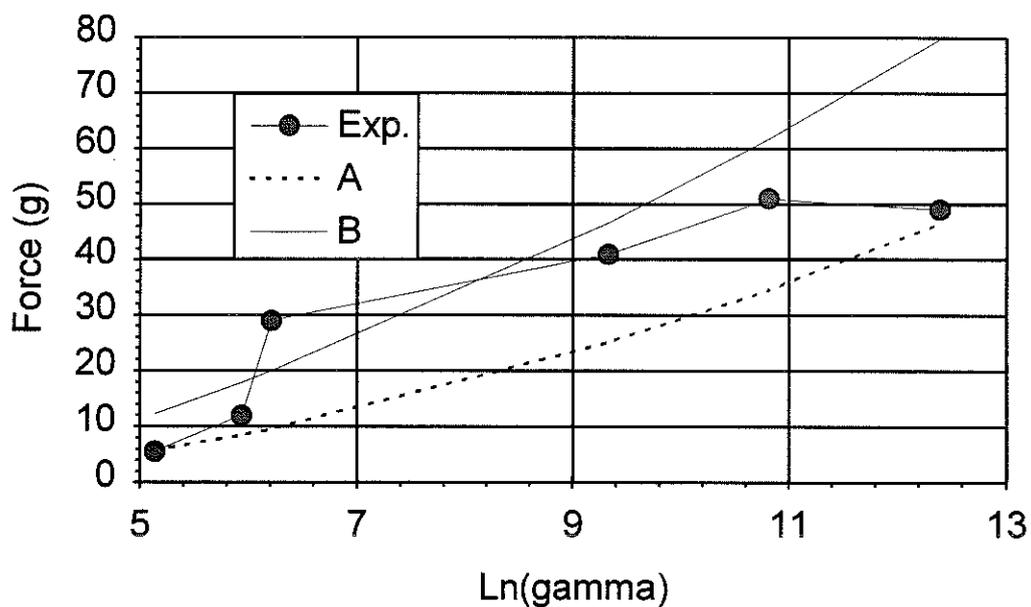


**Figure II.III.5** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2128/47V50.

V = 10 kV

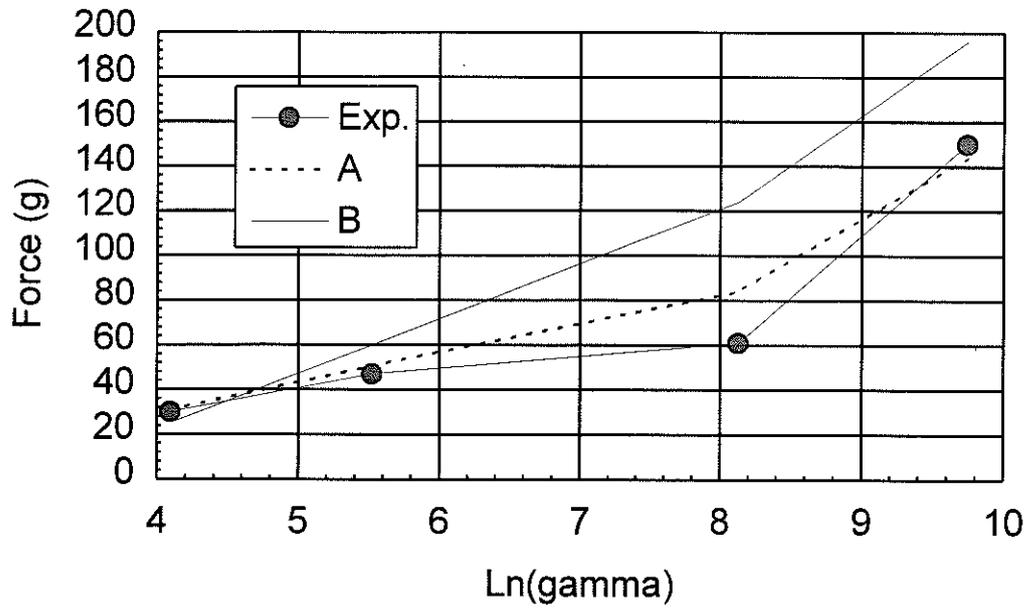


V 5 kV

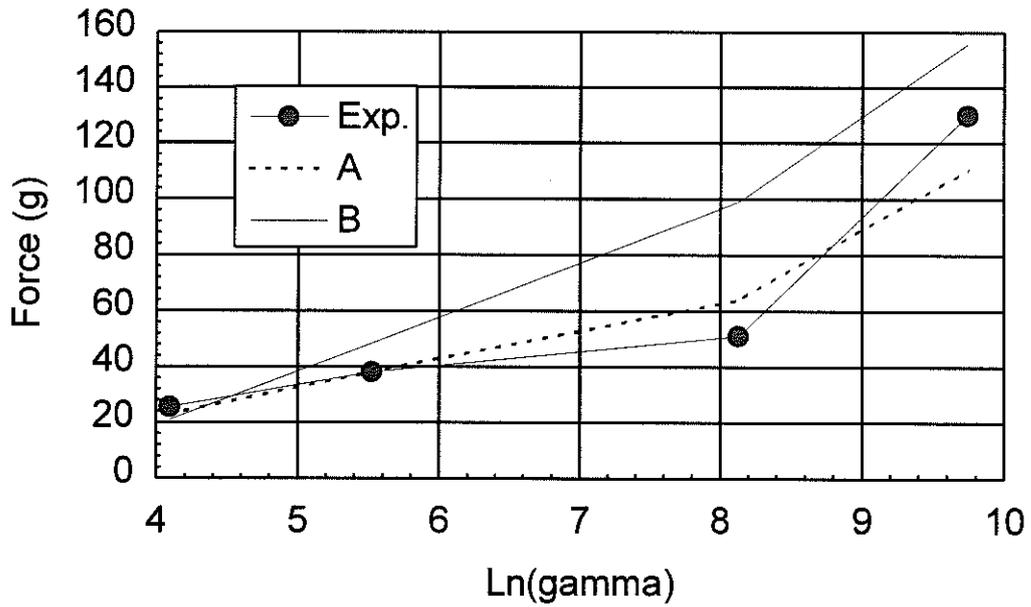


**Figure II.III.5 (suite)** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2128/47V50.

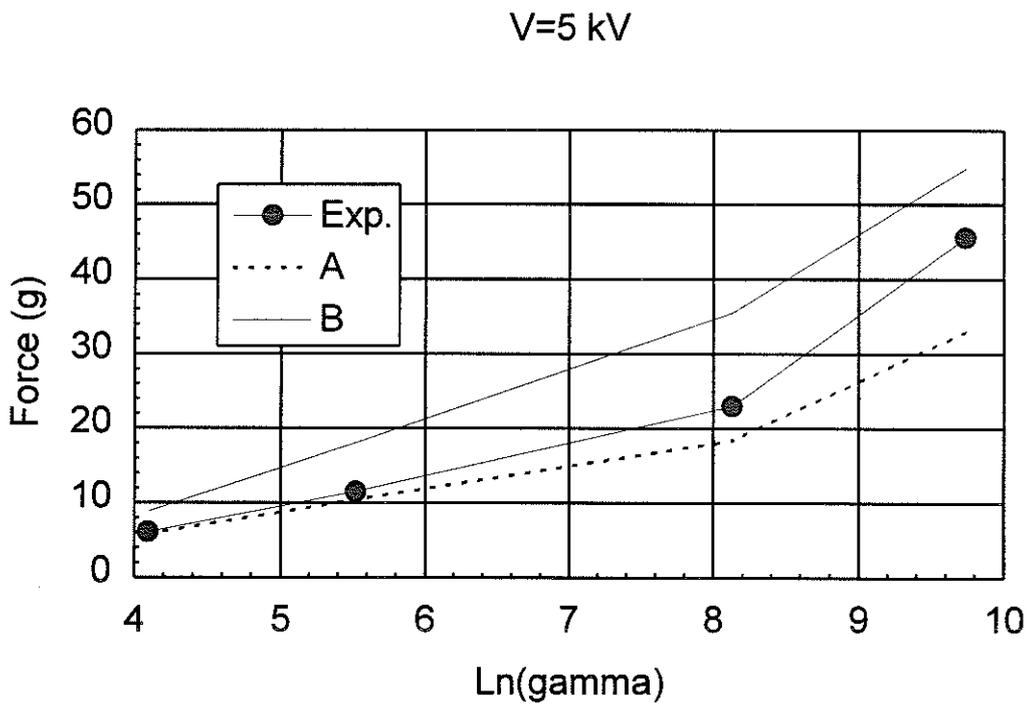
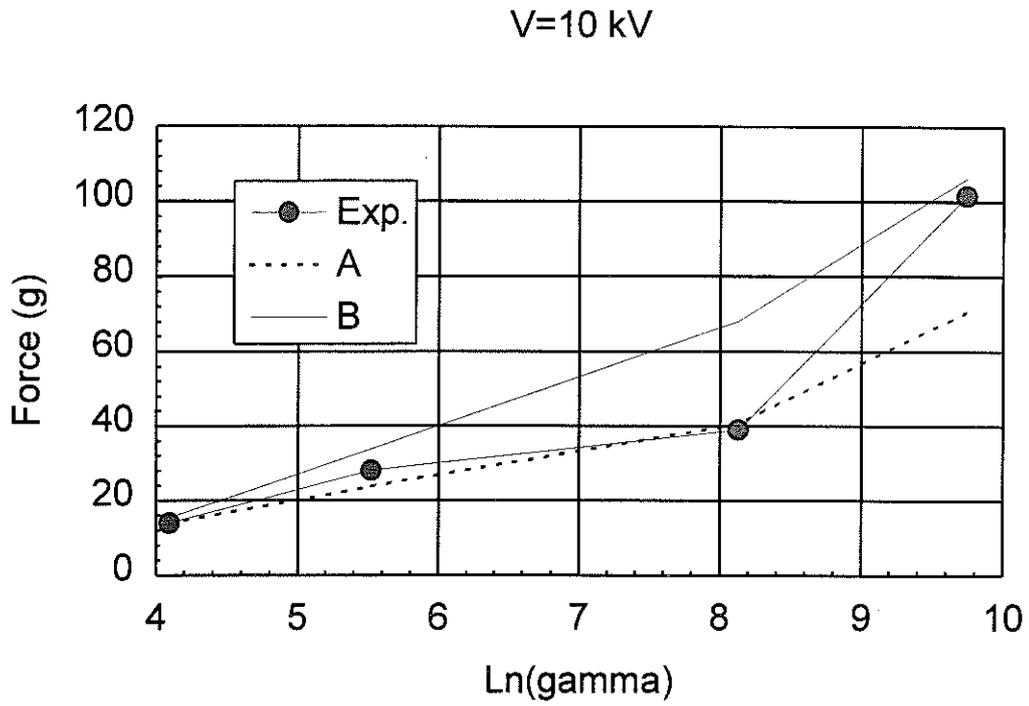
V=19 kV



V=15 kV

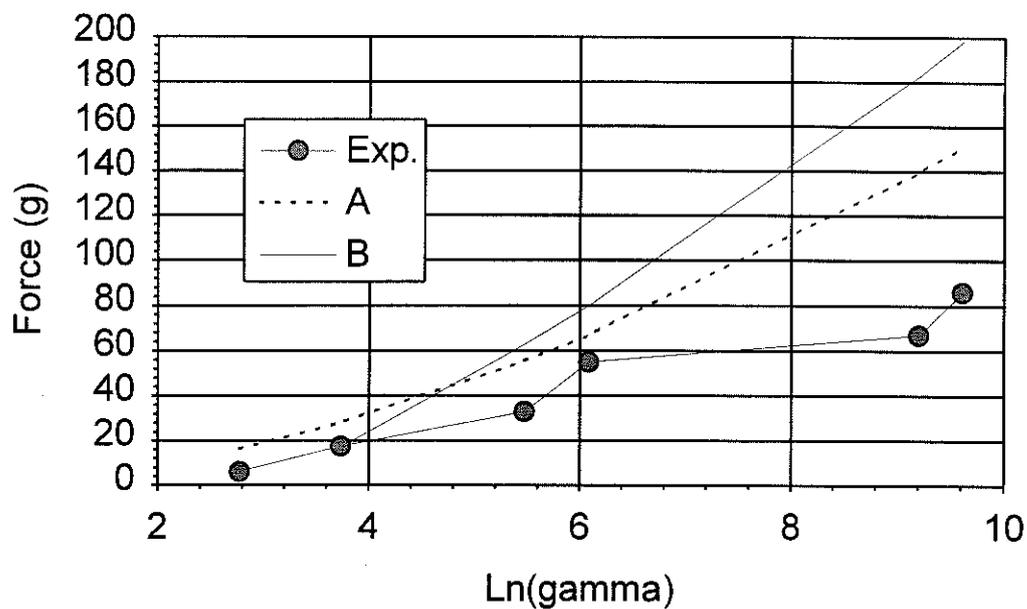


**Figure II.III.6** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2128/Jarylec.

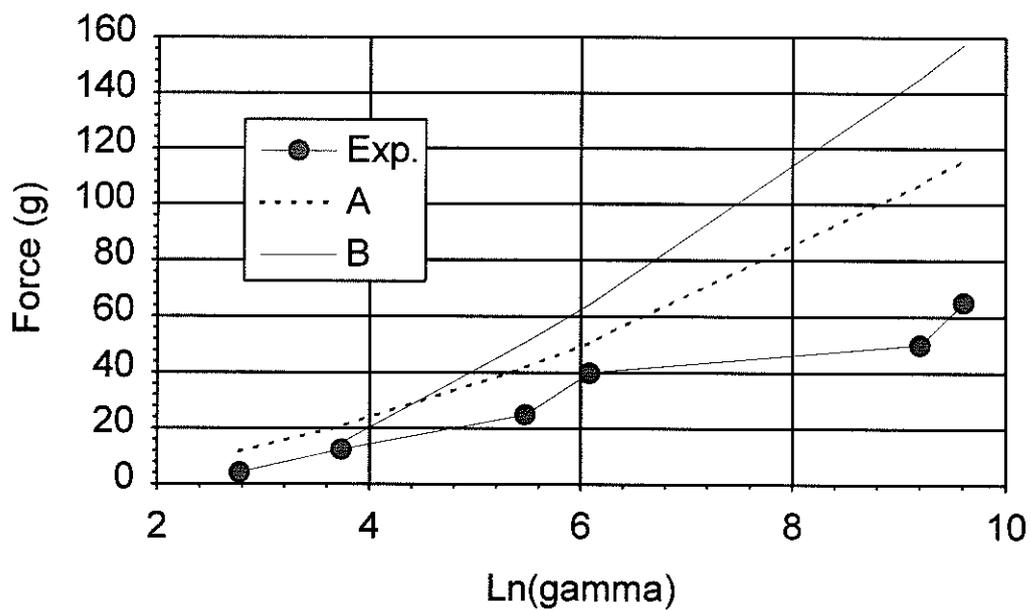


**Figure II.III.6 (suite)** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2128/Jarylec.

V = 19 kV

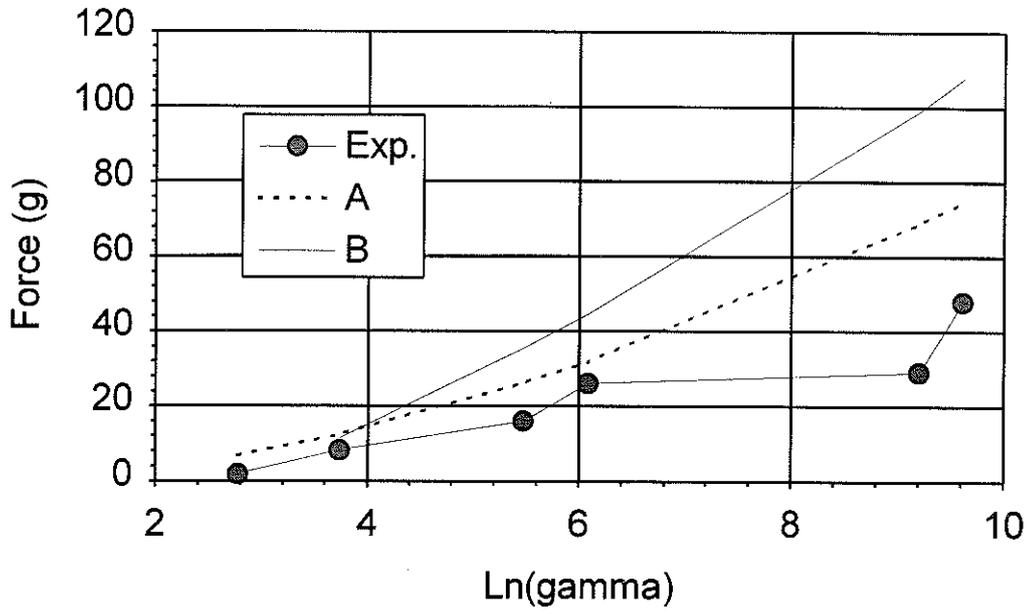


V = 15 kV

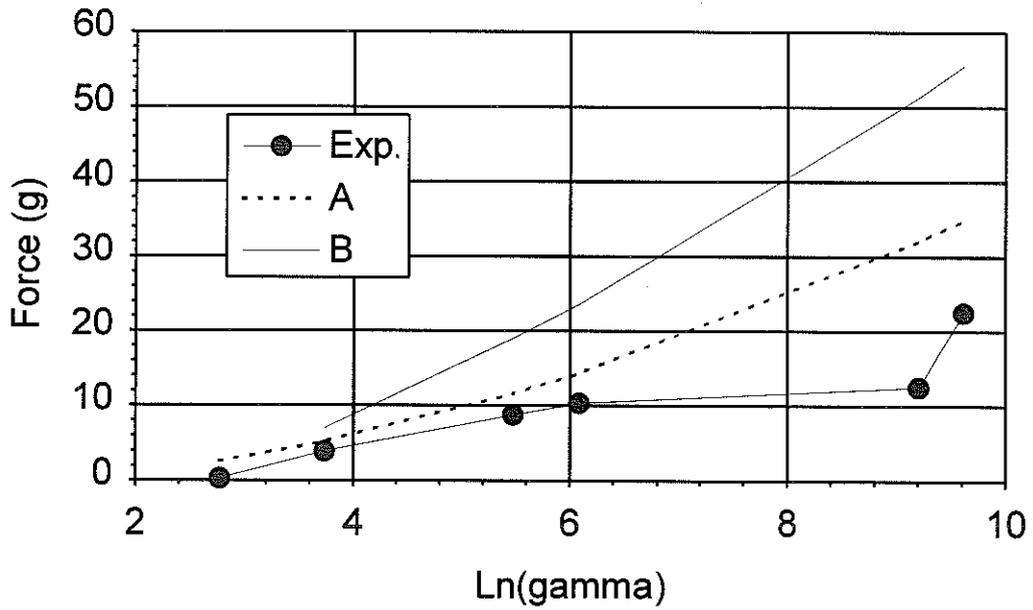


**Figure II.III.7** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2124/47V50.

V = 10 kV



V = 5 kV



**Figure II.III.7 (suite)** : Comparaisons entre les mesures expérimentales et les valeurs obtenues avec le modèle de conduction pour différentes tensions et pour L2124/47V50.

### III.4 : Variation de la force d'interaction entre sphères en fonction de la distance de séparation

Dans le chapitre II nous avons abordé la variation de la force en fonction de la distance de séparation  $s$  des sphères. Nous avons pu constater que la relation (1), que l'on peut exprimer par :

$$F \cong 2\pi\varepsilon_L R^2 E_o^2 \frac{R}{s} \propto U^2 \frac{R}{s} \quad (14)$$

ne décrivait pas correctement la variation de la force pour des très faibles distances  $s$  mais donnait pour des  $s$  plus importants (mais  $< R$ ) de bons résultats quantitatifs. Dans un fluide ER soumis à un cisaillement les chaînes s'inclinent puis se brisent. Il est donc intéressant d'estimer théoriquement et de mesurer la force d'interaction entre deux sphères séparées d'une distance  $s$ . Nous pouvons distinguer deux cas : le cas pour lequel les distances  $s$  sont faibles et où le courant passant entre les sphères joue un rôle important et le cas où la distance  $s$  sera suffisante pour que l'on puisse négliger l'influence du courant et considérer les demi-sphères comme équipotentielles. Pour le premier cas nous pouvons étendre le modèle de conduction au cas de deux sphères séparées d'une distance  $s$  petite.

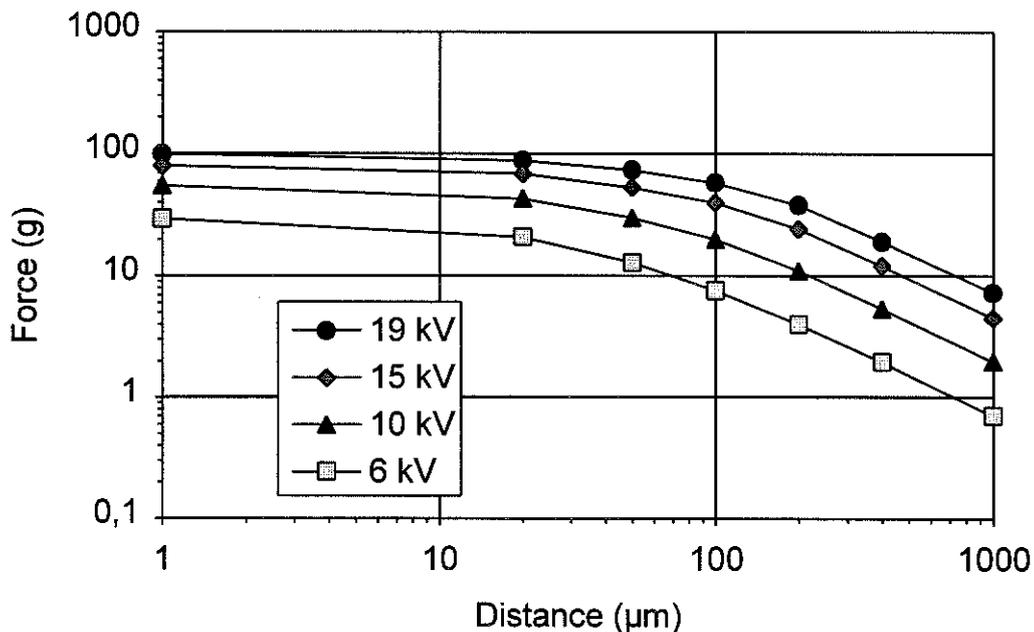
#### III.4.1 Observations expérimentales :

Nous allons dans un premier temps examiner les résultats expérimentaux pour vérifier si effectivement le comportement de la force d'interaction entre les deux demi-sphères est cohérent avec les tendances données par le modèle de conduction. Les mesures ont été effectuées à l'aide du polyamide L2128 dans de l'huile TF50 et du Jarylec pour différents  $\Gamma$  et avec L2124 dans de l'huile 47V50 également pour différents  $\Gamma$ . Les résultats présentés ne concernent que le cas L2128/TF50, ceux obtenus dans les autres liquides étant tout-à-fait similaires.

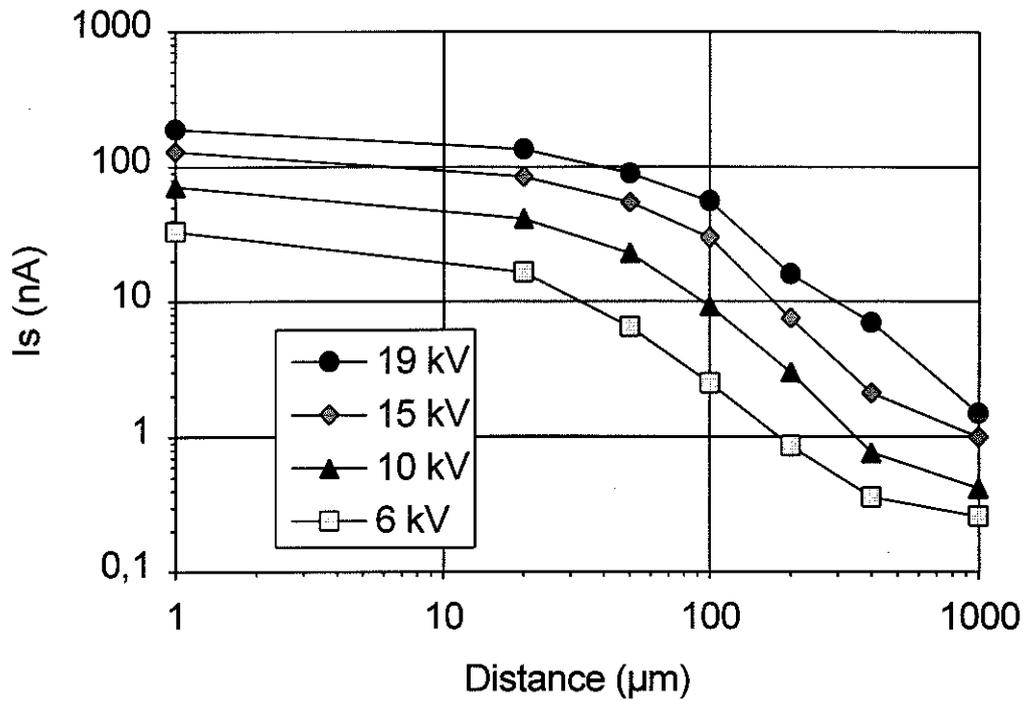
Si nous regardons l'allure générale de l'évolution de la force en fonction de la distance, dans le cas de l'huile TF50 pure ( $\Gamma = 14000$ ) nous constatons des variations très similaires pour les différentes tensions (Fig. II.III.8 et 10) [la valeur de la force pour  $s = 0$  est représentée sur l'axe des ordonnées,  $x = 1 \mu\text{m}$ ]. Au point de contact la variation se fait proportionnellement à  $U$  alors que pour  $s = 1 \text{ mm}$  elle se fait suivant  $U^2$  conformément à la relation (14). Au-delà de  $200 \mu\text{m}$  les courbes varient suivant une puissance  $-1$  en fonction de la distance. Nous nous sommes limités à  $1 \text{ mm}$  car le dispositif n'étant pas initialement prévu pour mesurer la force en fonction de la distance, l'électrode de garde ne bouge pas et la sphère mobile se retrouve légèrement décalée lorsque  $s$  augmente. Les mesures effectuées sur le

courant nous montrent également un comportement proche de celui de la force, forte augmentation pour les distances supérieures à 100  $\mu\text{m}$  puis saturation lorsque les demi-sphères arrivent en contact (Fig. II.III.9). Si nous regardons l'évolution de la force en fonction de la tension pour différentes distances (toujours pour  $\Gamma = 14000$ ) nous observons effectivement une variation quadratique de la force avec la tension pour les distances importantes, puis, progressivement, lorsque la distance diminue l'apparition pour les tensions élevées de la variation linéaire de la force avec la tension (Fig. II.III.10). Ce changement correspond à la transition entre les distances pour lesquelles les sphères sont équipotentielles et les distances pour lesquelles le courant passe entre les demi-sphères.

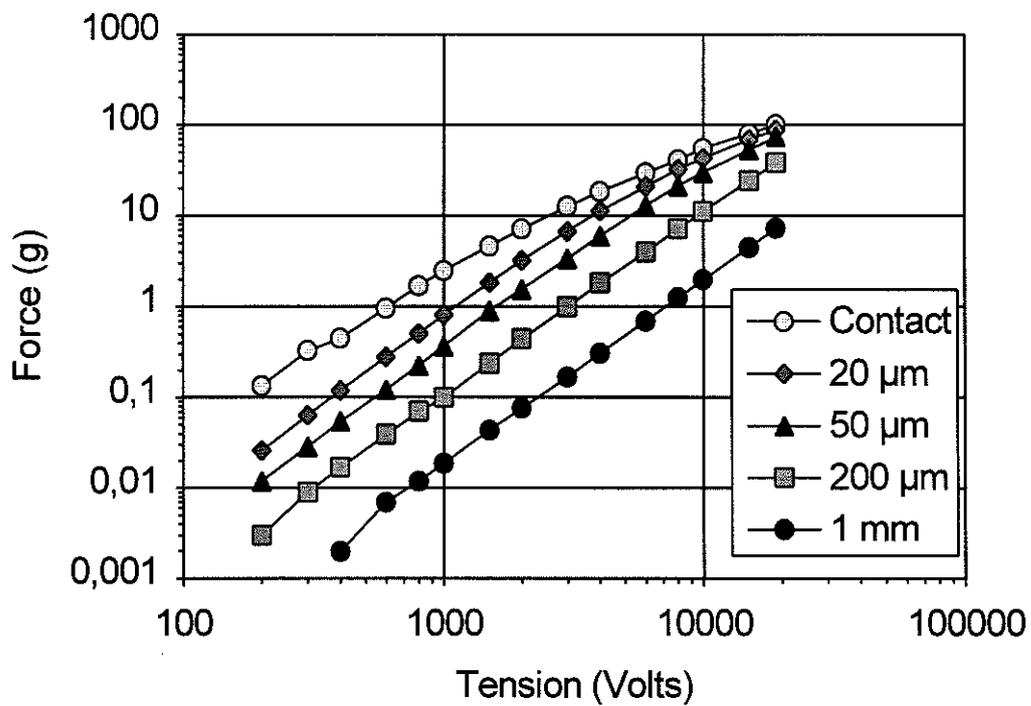
Considérons maintenant l'évolution de la force et du courant en fonction de la distance pour  $U = 10 \text{ kV}$  et pour différentes valeurs du rapport gamma (Fig. II.III.11 et II.III.12). Nous remarquons que la diminution de la force se fait plus tôt pour les gammas importants alors qu'elle reste quasiment constante jusqu'à 100 ou 200  $\mu\text{m}$  pour  $\Gamma = 30$ . De plus il semble que pour les grandes distances les courbes tendent à être confondues et évoluent alors suivant une pente -1 (ce qui est normal puisque la relation (14) ne dépend pas du rapport gamma). Au niveau du courant nous observons le même type de comportement, c'est-à-dire qu'il reste quasiment constant pour  $\Gamma = 30$  alors qu'il décroît plus rapidement et plus tôt pour  $\Gamma = 14000$ . Lorsque le rapport gamma est important la conduction ne joue un rôle que pour les faibles distances, pour les distances suffisamment importantes les sphères deviennent équipotentielles. Pour les faibles  $\Gamma$  le courant passant dans le liquide joue un rôle jusqu'à des distances plus importantes et les sphères ne peuvent alors plus être considérées comme équipotentielles.



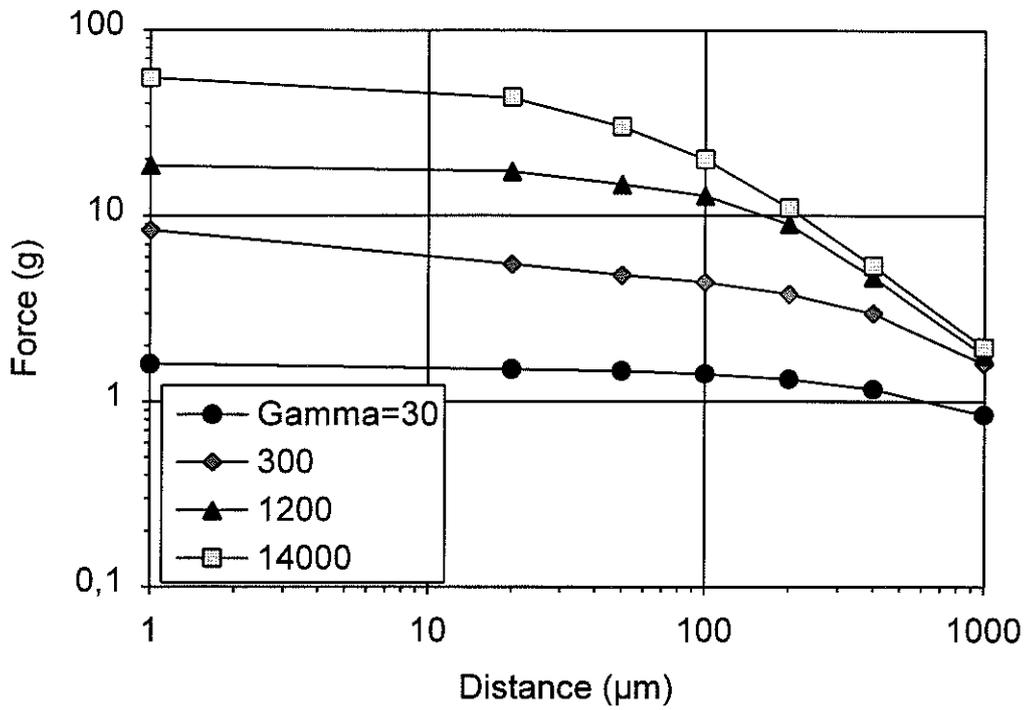
**Figure II.III.8** : Variation de la force en fonction de la distance entre les demi-sphères pour  $\Gamma = 14000$  et avec L2128/TF50.



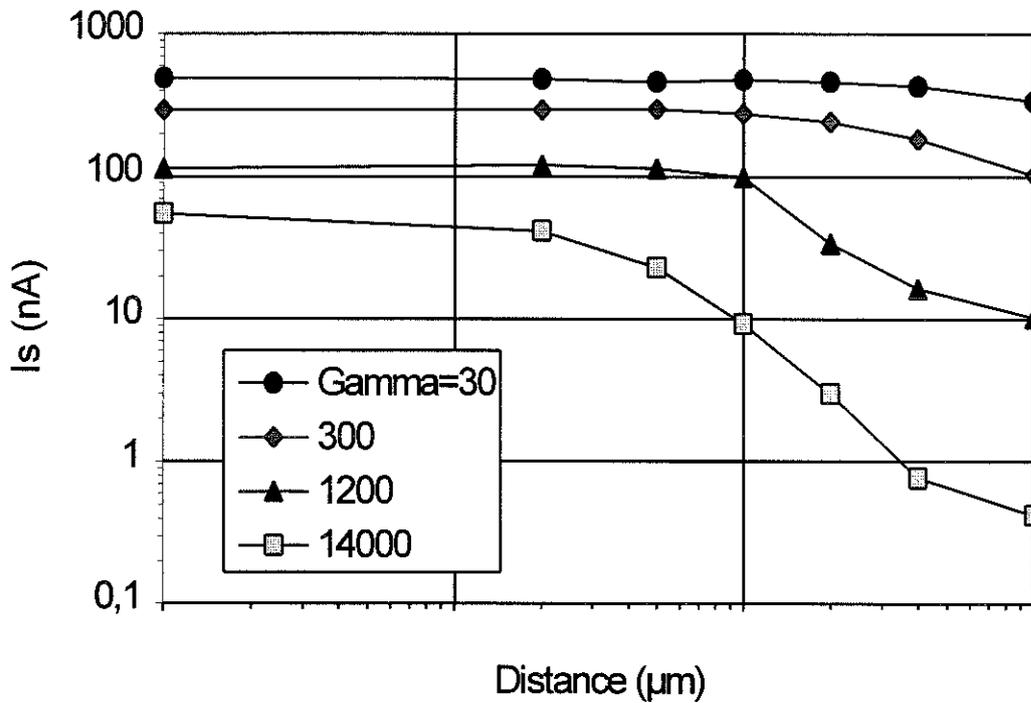
**Figure II.III.9** : Variation de  $I_s$  en fonction de la distance entre les demi-sphères pour  $\Gamma = 14000$  et avec L2128/TF50.



**Figure II.III.10** : Variation de la force en fonction de la tension pour différentes distances et pour  $\Gamma = 14000$  et avec L2128/TF50.



**Figure II.III.11** : Variation de la force en fonction de la distance pour  $U = 10$  kV et pour différents  $\Gamma$  avec L2128/TF50.



**Figure II.III.12** : Variation de  $I_s$  en fonction de la distance pour  $U = 10$  kV et pour différents  $\Gamma$  avec L2128/TF50.

### III.4.2 Extension du modèle de conduction au cas de sphères séparées d'une faible distance :

Nous considérons le modèle de conduction avec saturation du courant et nous nous plaçons dans le cas où les sphères sont séparées d'une distance  $s$  (Fig. II.III.13).

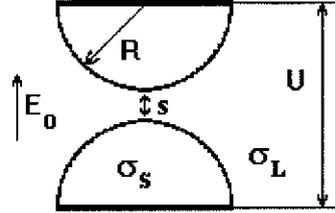


Figure II.III.13 :

Nous pouvons estimer le rapport  $R/\delta$  en procédant d'une manière similaire à celle utilisée dans le § III.II.2. En définissant le coefficient  $\beta = \sqrt{\frac{2E_o}{E_c}}$  et après quelques calculs ceci nous amène à [Atten *et al.*, 1996] :

$$\frac{R}{\delta} \cong \beta^{-1} \sqrt{\frac{1+Rs/\delta^2}{1+s/2R}} \ln \left[ \frac{\alpha \Gamma^2 K \epsilon_L E_c (1+s/2R)^{9/4}}{\sqrt{2\pi} \sigma_s R (1+Rs/\delta^2)^{13/4}} \beta^{9/2} \left(\frac{R}{\delta}\right)^{11/2} \right] \quad (16)$$

cette expression assez complexe peut être approchée , dans le cas où  $s/R \ll 1$ , par :

$$\frac{R}{\delta} = \left(\frac{R}{\delta}\right)_0 \left[ 1 + a \frac{s}{R} \right] \quad (17)$$

$$a = \frac{(1/2)(R/\delta_0)^2 - (13/4\beta)(R/\delta_0) - 1/4 + (9/8\beta)(\delta_0/R)}{1 - (11/2\beta)(\delta_0/R)} \quad (18)$$

avec  $\left(\frac{R}{\delta}\right)_0$  la valeur de  $\left(\frac{R}{\delta}\right)$  lorsque  $s = 0$ . Ceci nous donne pour la force l'expression suivante:

$$F = 2\pi R^2 \epsilon_L E_o^2 \left(1 + \frac{s}{2R}\right)^2 \left(\frac{R}{\delta}\right)^2 \left[ \left(1 + \frac{sR}{\delta^2}\right)^{-1} + \left(1 + \frac{sR}{\delta^2}\right)^{-2} \right] \quad (19)$$

que l'on peut également approcher, en notant  $F_0$  la force pour  $s = 0$ , par :

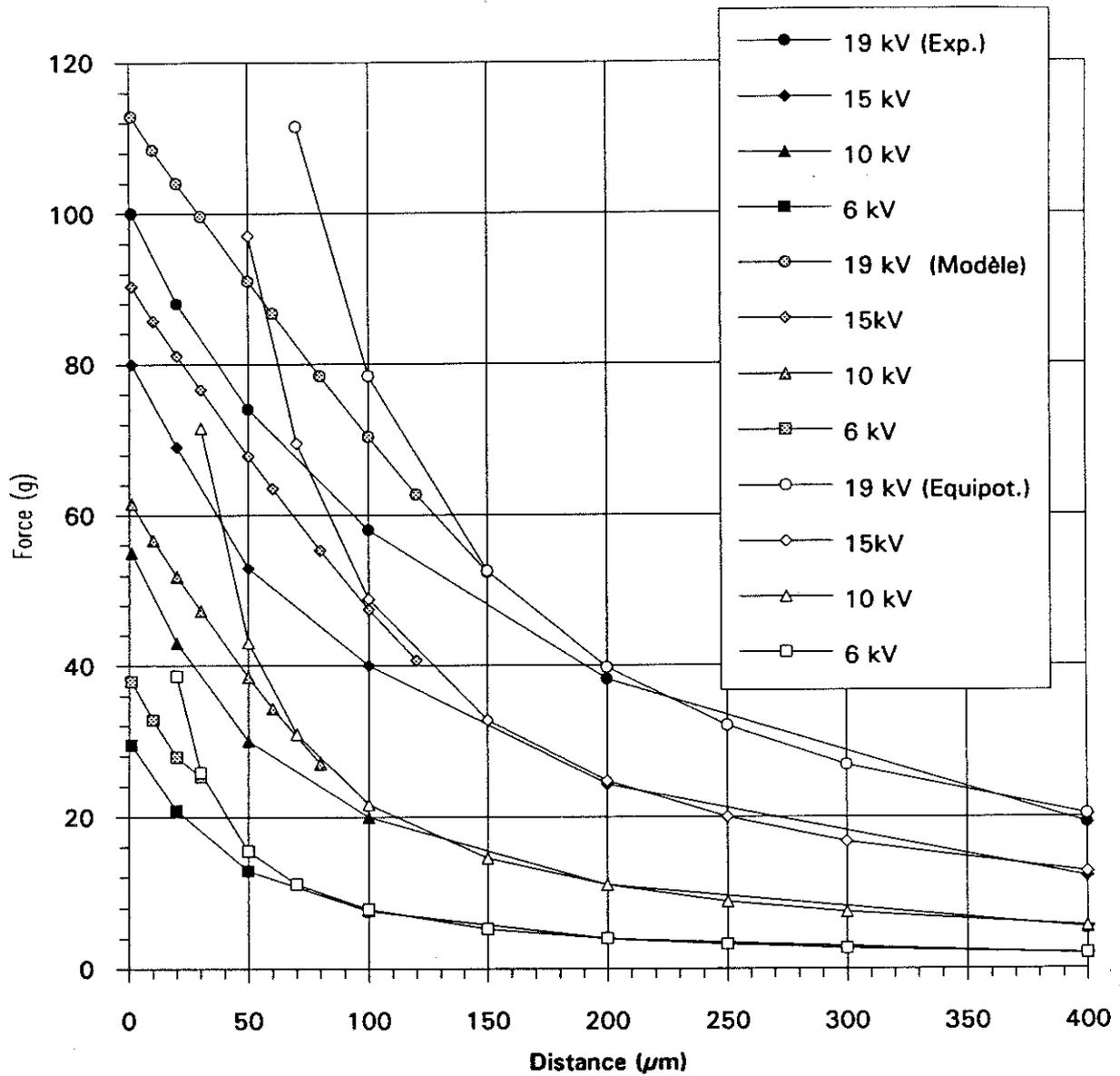
$$F = F_0 \left[ 1 - b \frac{s}{R} \right] \quad (20)$$

$$b = \frac{(1/2)(R/\delta_0)^2 - (7/4\beta)(R/\delta_0) - 1/2 + (13/4\beta)(\delta_0/R)}{1 - (11/2\beta)(\delta_0/R)} \quad (21)$$

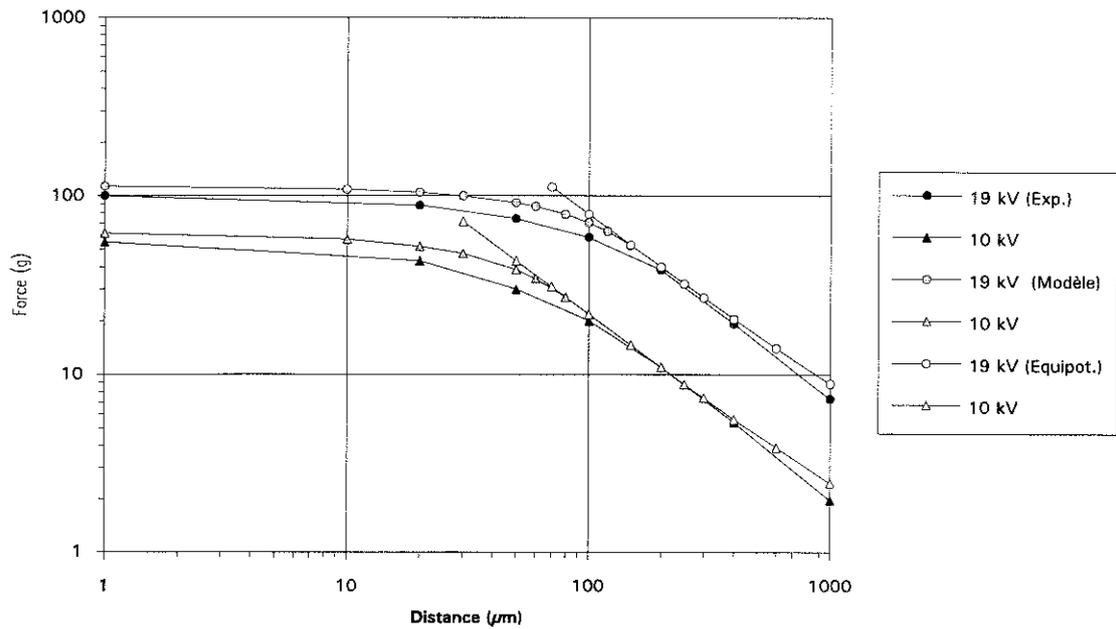
Ces expressions simplifiées sont obtenues à l'aide d'un développement limité du premier ordre en  $s/R$  des expressions  $[1+s/2R]$  et  $[1+(s/R)(R^2/\delta^2)]$ . Pour qu'elles soient valables, il faut que le terme en  $s/R$  soit inférieur à 0,1 et en considérant une valeur typique du rapport  $R/\delta$  égale à 10 ceci nous donne  $s/R < 10^{-3}$ . Dans le cas des demi-sphères cette limite nous donne  $s = 7 \mu\text{m}$ , pour des distances plus importantes il nous faut utiliser l'expression exacte. Remarquons cependant que les expressions approchées donnent à la fois la pente à l'origine mais également un bon ordre de grandeur même quand  $s$  est un plus trop important.

Nous pouvons alors comparer les résultats obtenus à l'aide des deux expressions théoriques (faibles distances et grandes distances) et les résultats expérimentaux (Fig. II.III.14). Comme nous l'avons signalé précédemment le modèle de conduction surestime la force lorsque les demi-sphères sont en contact, ce que nous retrouvons pour les distances faibles. Pour les distances plus élevées la corrélation expérience/théorie semble excellente. Enfin remarquons le bon raccordement des deux courbes théoriques. Sur la figure II.III.15 où ne sont représentés, pour des raisons de clarté, que les points correspondant aux tensions 10 kV et 19 kV, nous voyons que les points expérimentaux pour  $s = 1 \text{ mm}$  s'écartent légèrement de la courbe théorique en étant inférieurs, nous pouvons attribuer cela au fait que les électrodes restent fixes (cf. § III.5.1). Les courbes tracées pour  $\Gamma = 1200$  à 10 kV montrent un comportement similaire au cas  $\Gamma = 14000$  (l'écart entre l'expérience et le modèle de conduction étant plus important car, pour des gammas de cet ordre, la saturation ne doit pas concerner tout l'espace entre les demi-sphères) (Fig. II.III.16).

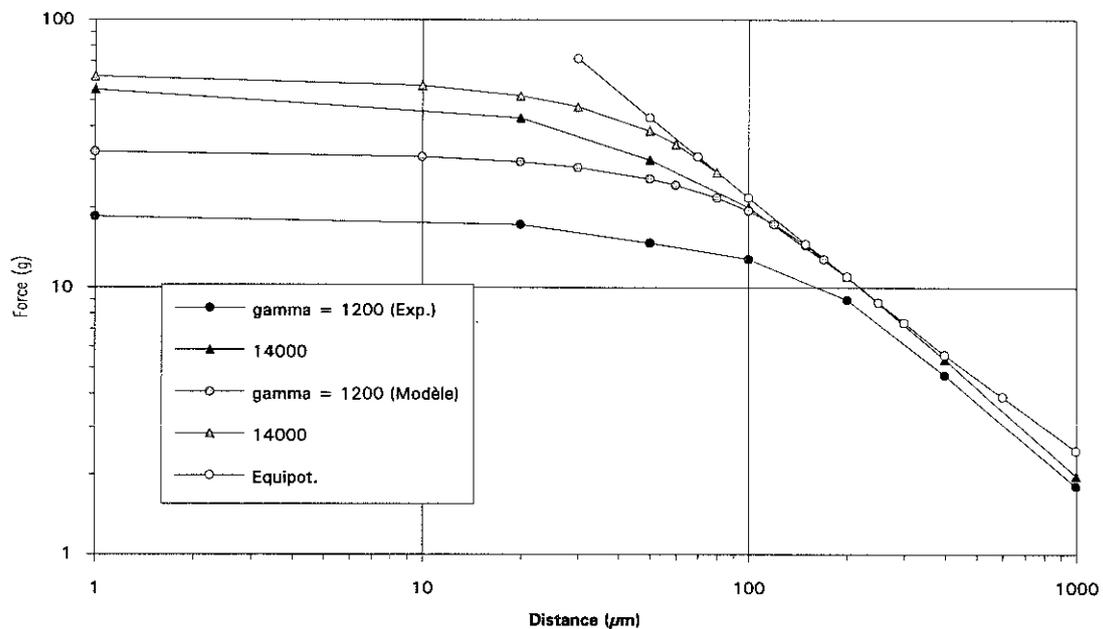
Dans le premier paragraphe (III.5.1) nous avons évoqué la transition en fonction de la distance entre un domaine (faibles distances) où le courant passait entre les sphères et un autre (distances plus importantes) où les sphères pouvaient être considérées comme équipotentielles. Si nous regardons les valeurs de la distance pour laquelle les deux expressions théoriques se rejoignent, (14) et (19), et lorsque la courbe expérimentale rejoint la droite de pente -1; si nous les comparons avec les valeurs de la distance  $y$  entre les surfaces des demi-sphères en contact correspondant à la limite de la zone  $\delta$  ( $x = \delta$  et  $y = \delta^2/R$ ), nous obtenons une assez bonne corrélation [Tableau II.III.4]. La distance  $s$  est légèrement plus importante, ce qui est normal puisque la distance  $y$  ne correspond pas exactement à la distance pour laquelle le courant ne passe plus entre les demi-sphères, nous avons considéré qu'une moitié du courant passait en dehors de la zone de contact, mais en donne une bonne approximation.



**Figure II.III.14** : Comparaisons des valeurs de la force en fonction de la distance entre les résultats expérimentaux et les résultats théoriques [modèle de conduction ( $\alpha = 0,31$ ) et sphères dans l'approximation équipotentielle]. Courbes correspondant à  $\gamma = 14000$  avec L2128/TF50 et en représentation linéaire.



**Figure II.III.15 :** Comparaisons des valeurs de la force en fonction de la distance entre les résultats expérimentaux et les résultats théoriques [modèle de conduction ( $\alpha = 0,31$ ) et sphères dans l'approximation équipotentielle] pour  $U = 19$  kV et  $U = 10$  kV. Courbes correspondant à  $\Gamma = 14000$  avec L2128/TF50 et en représentation logarithmique.

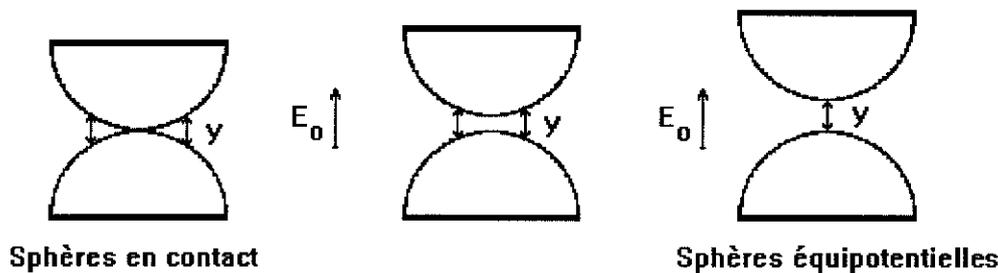


**Figure II.VII.16 :** Comparaisons des valeurs de la force en fonction de la distance entre les résultats expérimentaux et les résultats théoriques [modèle de conduction ( $\alpha = 0,31$ ) et sphères dans l'approximation équipotentielle] pour  $U = 10$  kV,  $\Gamma = 1200$  et  $\Gamma = 14000$  avec L2128/TF50.

Tension	19 kV	15 kV	10 kV	5 kV
s (Théorique)	150	100-120	70-80	30-40
y (modèle)	137	106	69,5	33,5
s (Expérience)	200	150	100-120	70
y (Expérience)	154	120	77,8	44,5

**Tableau II.III.4** : Comparaisons des valeurs de s correspondant à l'intersection des deux courbes théoriques avec les valeurs de la distance entre les demi-sphères pour  $x = \delta$  lorsque les sphères sont en contact  $\Gamma = 14000$  avec L2128/TF50.

Très schématiquement nous pouvons considérer que tant que la distance s est inférieure à la distance y, déterminant la limite de la zone de contact, le courant circule entre les deux sphères à travers le liquide; pour des distances supérieures le courant est négligeable et on peut considérer les sphères comme équipotentiellles (Fig. II.III.17).



**Figure II.III.17** : Variation avec la distance de la zone dans laquelle l'essentiel du courant passe.

Nous pouvons également remarquer que si la transition entre les deux zones n'est certainement pas aussi bien marquée, elle n'est pas non plus très étendue car la conductivité du liquide varie comme  $\exp(1/x)$  et donc nous passons très rapidement de la distance où  $\sigma_L = \sigma_S$  à celle où  $\sigma_L < 10 \sigma_S$ .

# Chapitre IV

## Autres mécanismes de conduction du liquide

Nous avons jusqu'à présent considéré uniquement les phénomènes de conduction relatifs au volume du liquide. D'autres processus de création de charges se produisent dans les liquides non polaires ou faiblement polaires, ce sont les processus d'injection. Ils surviennent au niveau des électrodes et peuvent augmenter fortement la conduction du liquide dans les mêmes ordres de grandeur que la dissociation renforcée. Enfin nous avons pu constater que les champs électriques dans la zone de contact pouvaient dépasser la centaine de kV/mm. Ces champs intenses sont du même ordre que les champs d'apparition de décharges partielles et de claquages dans les liquides diélectriques pour des épaisseurs de quelques dizaines de microns [Brosseau, 1989]. Ces décharges partielles vont localement augmenter très fortement la conduction du liquide.

Nous constaterons qu'effectivement ces deux phénomènes interviennent dans le cas de nos demi-sphères et par extension il est fort probable qu'ils interviennent également entre les particules d'un fluide ER.

### IV.1 Phénomènes d'injection

La saturation du courant entre les particules semble bien rendre compte de la loi de variation de l'interaction entre sphères obtenue avec la plupart des liquides quand  $\Gamma$  est élevé. Cependant dans le cas de l'huile silicone avec les polymères L2128 et L2124 il semble qu'une amorce de saturation se dessine en ce qui concerne la force pour  $\Gamma > 10^4$  avec L2128 et  $\Gamma > 500$  avec L2124. Nous avons supposé que le courant était saturé et que la quantité de charges disponibles provenait de la dissociation renforcée par le champ. Or il existe d'autres phénomènes quasiment universels susceptibles de provoquer une augmentation de la conductivité apparente du liquide : il s'agit des phénomènes d'injection survenant aux

interfaces solide/liquide. Cette augmentation de la conductivité du liquide va accroître la taille de la zone de contact et donc diminuer l'interaction entre les particules.

Dans le chapitre III nous avons considéré que les ions se dissociaient dans le volume, migraient vers une électrode puis perdaient ou gagnaient un électron et contribuaient ainsi au transfert de charges entre les deux particules. D'autre part, au niveau des électrodes, les molécules du liquide peuvent prendre ou céder un électron sous l'effet de réactions électrochimiques. Les ions ainsi créés sont entraînés par le champ électrique vers l'électrode opposée où ils se neutralisent. Cette réaction qui contribue à augmenter le transfert de charges à travers le liquide est appelée injection car un porteur de charges créé au niveau de l'interface est "injecté" dans le volume de liquide. Dans le cas d'un polymère conducteur ionique, tels que L2128 et L2124, il est possible également que les ions du polymère passent dans le liquide. En effet si celui-ci pénètre dans le polymère, il peut solvater les ions et ainsi faciliter leur passage dans le liquide. Nous sommes donc également en présence de porteurs de charges qui quittent l'interface solide/liquide et sont injectés dans le liquide. Nous regrouperons ces deux phénomènes sous le terme général d'injection.

L'injection peut être unipolaire (injection à partir d'une seule électrode) ou bipolaire (injection à partir des deux électrodes). Dans le cas où le système est dissymétrique (par exemple une électrode de polymère et une électrode métallique), la polarité du champ électrique joue alors un rôle déterminant sur les processus électrochimiques et donc sur le courant.

Il nous est impossible dans la présente étude de distinguer la contribution du processus d'injection de celle de la conduction volumique du liquide entre les demi-sphères. Le travail réalisé au laboratoire par H. Benqassmi, et qui concernait l'étude de la conduction entre deux plaques planes de polymère L2124 a montré qu'il se produisait effectivement des injections entre les deux "électrodes" mais que l'intensité de cette injection était moindre que celle obtenue, dans les mêmes conditions, entre deux plaques métalliques [Atten *et al.*, 1995]. Il a montré également que le passage du courant était principalement dû à cette injection pour des champs suffisamment élevés. Toutefois le volume de liquide présent entre les deux particules au niveau de la zone de contact étant faible (en particulier dans les fluides ER où la taille des particules est de l'ordre de quelques microns), et les liquides étant isolants, la quantité d'espèces susceptibles d'être dissociées dans ce volume est faible et la conduction provenant de la dissociation au sein du liquide ne peut pas être très importante. De plus dans les fluides ER où les particules sont petites c'est d'autant plus probable que la quantité d'espèces dissociables est proportionnelle au volume du liquide et donc à  $R^3$ , alors que les courants d'injection, proportionnels à la surface, ne varient que suivant  $R^2$ . Ainsi plus les particules sont importantes moins l'effet de l'injection est prépondérant (pour des champs équivalents). Le faible volume de liquide compris entre les particules (dans le cas d'un fluides ER) fait que le nombre de paires d'ions disponibles pour participer à la conduction dans ce volume va assez

rapidement diminuer, la diffusion d'autres paires ions provenant du liquide entourant les particules ne pouvant pas être suffisamment rapide pour alimenter ce volume. Il est donc très probable que la conduction entre les particules d'un fluide ER soit essentiellement due à des phénomènes d'injection.

Si nous négligeons la contribution du processus de dissociation en volume, nous pouvons écrire que le courant associé à une injection unipolaire a pour expression :

$$j = Kq_i(E)E$$

où  $q_i(E)$  est la densité volumique de charges créée à l'interface. Le terme  $Kq_i(E)$  peut être interprété comme une conductivité équivalente  $\sigma_q(E)$ . Dans le cas d'une injection bipolaire nous devons écrire :

$$j = K^+q_i^+(E) + K^-q_i^-(E)$$

Pour les liquides non polaires, la loi  $q_i(E)$  d'injection sur une électrode métallique est [Blossey, 1974 - Charle et Willig, 1978 - Denat, 1982] :

$$q_i(E) = q_{i0}G\left(\frac{E}{E_c'}\right)$$

où  $E_c'$  est un champ caractéristique de l'injection et  $G(E/E_c')$  a pour les champs forts la loi asymptotique :

$$G\left(\frac{E}{E_c'}\right) \cong \exp\left(\sqrt{\frac{E}{E_c'}}\right)$$

Nous pouvons estimer le rapport  $R/\delta$  en procédant comme dans le cas où nous avons saturation (Chap. III), c'est-à-dire en déterminant la conductance du liquide pour  $x > \delta$ . Ceci nous donne une expression similaire à celle obtenue avec la saturation :

$$\frac{R}{\delta} \cong \sqrt{\frac{E_c'}{2E_0}} \ln\left(\frac{\alpha\Gamma_i}{2\pi} \sqrt{\frac{2E_0}{E_c'}}\right)$$

La force a alors la forme suivante :

$$F \cong 2\pi R^2 \epsilon_L E_c' E_0 \left[ \ln\left(\frac{\alpha\Gamma_i}{2\pi} \sqrt{\frac{2E_0}{E_c'}}\right) \right]^2$$

où  $\Gamma_i = \sigma_S/(\sigma_L)_{eq} = \sigma_S/(Kq_{i0})$  est un rapport des conductivités équivalent à  $\Gamma$  dans le cas d'une conduction volumique.

Nous ne connaissons pas les lois d'injection pour les polymères. Néanmoins si nous considérons que la fonction G est de la forme :

$$G\left(\frac{E}{E_c}\right) \cong \exp\left(\frac{E}{E_c}\right)$$

nous retrouvons pour la force une variation linéaire en fonction du champ appliqué. Il semble donc que la variation de la force d'interaction ne soit pas très sensible au détail de la loi d'injection. Si nous prenons maintenant une loi de puissance  $G\left(\frac{E}{E_c}\right) \cong \left(\frac{E}{E_c}\right)^m$  nous obtenons pour  $R/\delta$  :

$$\frac{R}{\delta} \cong \sqrt{\frac{E_c'}{2E_o}} \left[ \frac{m\alpha\Gamma_i}{\pi} \sqrt{\frac{2E_o}{E_c'}} \right]^{2m+1}$$

et dans ce cas nous arrivons à une expression de la force qui est :

$$F \cong 4\pi R^2 \varepsilon_L \left( \frac{\alpha m \Gamma_i}{2^m \pi} \right)^{\frac{2}{2m+1}} \cdot E_c'^{\frac{2m}{2m+1}} \cdot E_o^{\frac{2m}{2m+1}}$$

Par exemple dans le cas de l'Ugilec nous avons, pour les champs forts, une pente de 1,3 ce qui correspondrait à une valeur  $m = 1,1$ . Mais cela reste très hypothétique.

Ce que nous pouvons remarquer c'est que la variation de la force suivant le champ électrique  $E_o$  est déterminée par la forme de la loi d'injection, ou la loi de dissociation renforcée par le champ, c'est-à-dire par la forme de la loi d'augmentation du courant.

## IV.2 Décharges partielles dans la zone de contact

On ne peut généralement pas appliquer sur les liquides diélectriques des champs supérieurs à une valeur de l'ordre de 100 à 200 kV/mm sans que des décharges partielles ou des claquages électriques apparaissent. Nous avons vu dans le chapitre III qu'aussi bien les estimations théoriques que les mesures expérimentales donnaient des champs de cet ordre de grandeur. Nous donnons dans le tableau II.IV.1 les valeurs du champ dans la zone de contact estimées à l'aide du modèle tenant compte de la saturation (Th) et des résultats expérimentaux (Ex) pour l'huile TF50 (le calcul est effectué pour  $x = \delta$ ). Dans le tableau II.IV.2 et II.IV.4 nous donnons celles correspondant au Jarylec et à l'huile 47V50.

L2128/TF50	19 kV	15 kV	10 kV	5 kV
$\Gamma = 22000$ (Th)	152	155	157	162
$\Gamma = 22000$ (Ex)	135	129	123	117
$\Gamma = 14000$ (Th)	138	140	143	150
$\Gamma = 14000$ (Ex)	123	125	128	112

**Tableau II.IV.1** : Valeur du champ dans la zone de contact pour L2128/TF50 en kV/mm

L2128/Jarylec	19 kV	15 kV	10 kV	5 kV
$\Gamma = 17000$ (Th)	200	202	205	213
$\Gamma = 17000$ (Ex)	153	168	197	177

**Tableau II.IV.2** : Valeur du champ dans la zone de contact pour L2128/Jarylec en kV/mm

L2128/47V50	19 kV	15 kV	10 kV	5 kV
$\Gamma = 243000$ (Th)	293	293	300	309
$\Gamma = 243000$ (Ex)	160	182	189	190

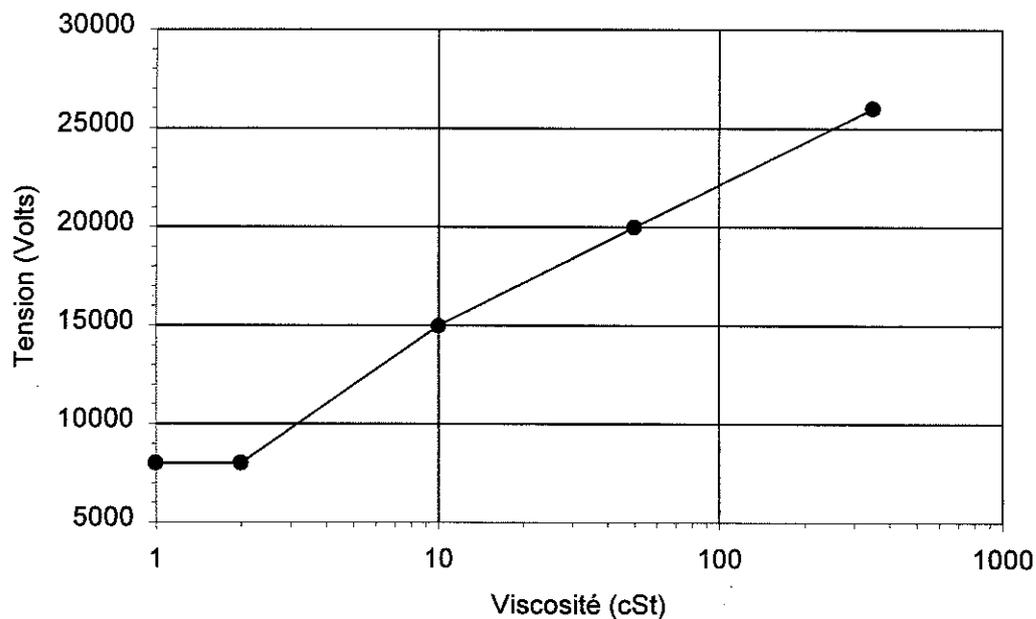
**Tableau II.IV.3** : Valeur du champ dans la zone de contact pour L2128/47V50 en kV/mm

L2124/47V50	19 kV	15 kV	10 kV	5 kV
$\Gamma = 15000$ (Th)	160	204	209	215
$\Gamma = 15000$ (Ex)	88	85	93	87

**Tableau II.IV.4** : Valeur du champ dans la zone de contact pour L2124/47V50 en kV/mm

Nous voyons en tout premier lieu que les valeurs, aussi bien théoriques qu'expérimentales, sont très élevées et de l'ordre de grandeur des champs d'apparition des décharges partielles. Nous constatons que l'approche théorique donne des champs plus élevés lorsque la tension diminue. Ceci s'explique par la présence du champ  $E_o$  et de  $R/\delta$  dans la relation (12) qui détermine  $R/\delta$  et donc l'épaisseur  $y$  de la zone de contact, nous avons  $E(\delta) \propto [\ln(E_o^{-1/2})]^2$ . Les résultats expérimentaux n'ont pas de tendance particulière et l'erreur que nous commettons sur la mesure ne nous permet pas de conclure. Nous constatons que les valeurs des champs sont relativement proches dans le cas L2128/TF50, ce qui explique dans ce cas la bonne adéquation entre le modèle de conduction et les résultats expérimentaux. Mais nous constatons que pour L2128/Jarylec, et plus particulièrement pour L2128/47V50 et pour L2124/47V50 les valeurs théoriques sont au-dessus des valeurs expérimentales.

Des décharges partielles ou micro-claquages ont été effectivement observés dans certains cas sur notre expérience à grande échelle. Nous avons réalisé une série de mesures à l'aide d'un couple de demi-sphères L2128 et diverses huiles silicones de propriétés différentes, en particulier la viscosité (V1, V2, V10, V50 et V350). Nous avons constaté qu'à partir d'une certaine valeur de la tension, la force d'interaction entre les demi-sphères diminuait et en même temps le ressort suspendu à la balance et relié à la demi-sphère supérieure était agité de mouvements saccadés. La tension à partir de laquelle les décharges apparaissent varie avec la nature de l'huile (Fig. II.IV.1). En dessous des tensions d'apparition des décharges partielles, les valeurs de la force et du courant sont très similaires pour toutes les huiles. Exceptée la valeur de la tension de claquage pour l'huile V2, la variation de la tension d'apparition des décharges partielles se fait linéairement avec le logarithme de la viscosité cinématique. Nous ne pouvons pas donner de valeur pour la rigidité diélectrique des liquides car elle dépend fortement de la nature des électrodes, de la distance inter-électrodes, de leur géométrie, de la pureté du liquide et des phénomènes physico-chimiques intervenant au niveau des interfaces. La géométrie de notre système, deux demi-sphères, rend l'analyse difficile car ces processus font appel à des avalanches électroniques qui nécessitent que les électrons puissent atteindre une certaine énergie pour ioniser le liquide. La longueur caractéristique entre deux chocs ionisants dépend de la nature du liquide et du champ électrique. Ces phénomènes sont relativement bien compris dans les gaz mais il n'en va pas de même dans les liquides.



**Figure II.IV.1** : Variation de la tension d'apparition des décharges dans les huiles silicones en fonction de leur viscosité

Il se peut qu'avant d'obtenir des décharges détectables avec notre dispositif des avalanches électroniques viennent augmenter la conduction du liquide et ainsi limiter le champ électrique dans la zone de contact. Ceci expliquerait les écarts importants entre les prédictions théoriques et les observations expérimentales en particulier avec l'huile 47V50. Mais il est également probable que ce soient des phénomènes d'injection qui viennent se superposer à la conduction volumique et ainsi limiter le champ dans la zone de contact.

### IV.3 Interaction sphère-électrode

Jusqu'à présent nous avons abordé uniquement le cas de l'interaction entre deux particules. Dans un fluide ER les particules situées aux extrémités des fibres interagissent avec la surface des électrodes et nous ne sommes plus dans une configuration sphère-sphère mais dans une configuration sphère-plan. Pour étudier ce cas de figure nous avons modifié notre cellule de mesure en supprimant la demi-sphère inférieure et en espaçant les électrodes de 7 mm. Nous avons donc la demi-sphère supérieure, de rayon 7 mm qui est en contact avec l'électrode inférieure. Dans cette section nous utilisons un couple de demi-sphères L2128 plongée dans de l'huile minérale Marcol (ESSO).

Sur le plan théorique il nous suffit de reprendre le même calcul que dans le chapitre III en se plaçant dans le cas où il y a saturation du courant dans le liquide et en prenant maintenant  $y \sim x^2/2R$  et  $U = RE_o$ . L'expression de  $R/\delta$  diffère peu de celle obtenue dans la configuration sphère-sphère, nous avons :

$$\frac{R}{\delta} \leq \sqrt{\frac{E_c}{2E_o}} \cdot \ln \left[ \frac{4K\alpha E_o \varepsilon_L}{\pi \sigma_S R} \cdot \Gamma^2 \left( \frac{2}{\pi} \right)^{-1/2} \left( \frac{2E_o}{E_c} \right)^{5/4} \left( \frac{R}{\delta} \right)^{11/2} \right]$$

L'expression de la force reste inchangée et est donnée par :

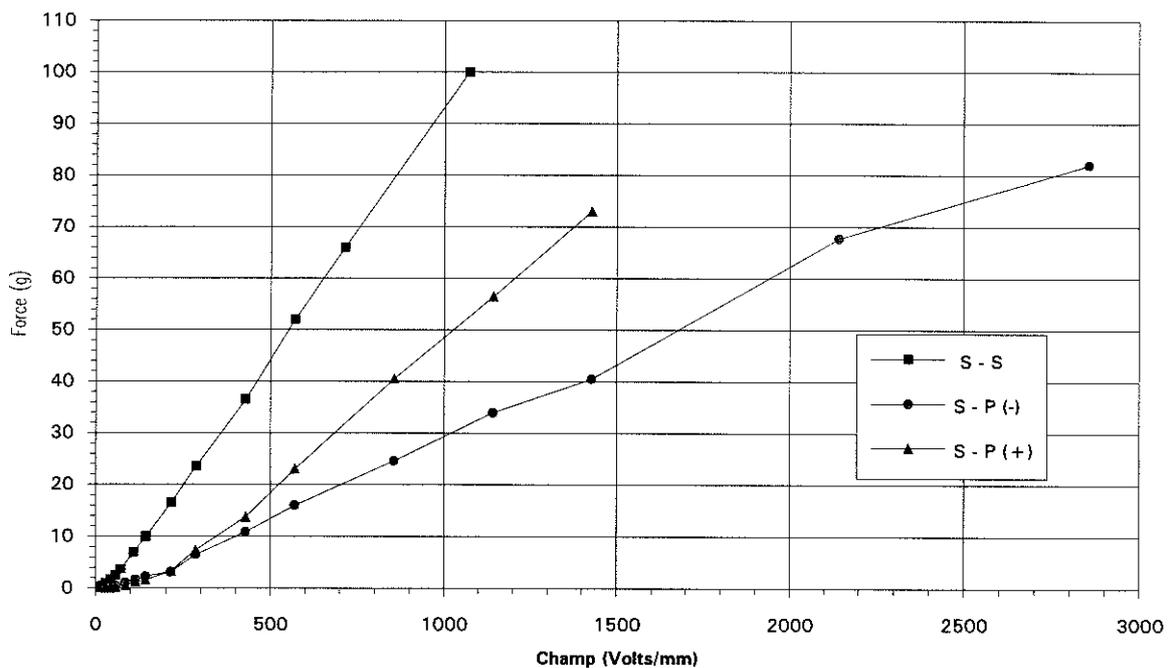
$$F \cong 4\pi R^2 \varepsilon_L E_o^2 \left( \frac{R}{\delta} \right)^2$$

Par rapport au cas sphère-sphère nous voyons que le terme à l'intérieur du logarithme est deux fois plus important; le rapport  $R/\delta$  est donc légèrement plus grand dans le cas sphère-plan que dans le cas sphère-sphère. Nous devons donc nous attendre à obtenir une force légèrement plus importante dans la configuration sphère-plan que dans la configuration sphère-sphère.

L'huile Marcol est particulièrement isolante ( $\sigma_L \sim 6.10^{-14}$  S/m) et nous donne un rapport des conductivités proche de  $3.10^5$ . Il faut remarquer que, dans le cas de cette huile, le courant qui circule à travers la cellule de mesure entre les électrodes métalliques augmente rapidement pour des champs supérieurs à 300 V/mm. Nous effectuons les mesures pour une configuration sphère-sphère et une configuration sphère-plan en examinant dans ce cas le comportement pour les deux polarités.

Les valeurs obtenues dans la configuration sphère-sphère sont quantitativement identiques à celles obtenues avec l'huile 47V50 (pour ces huiles  $\Gamma \sim 10^5$ ) sur le même couple de demi-sphères. La configuration sphère-sphère étant symétrique nous obtenons logiquement les mêmes résultats quelle que soit la polarité.

Sur la figure II.IV.2 sont représentées les variations de la force dans la configuration sphère-sphère et dans la configuration sphère-plan pour les deux polarités (la polarité indiquée entre parenthèse correspondant à celle de l'électrode).



**Figure II.IV.2** : Variation de la force en fonction du champ dans la configuration sphère-sphère et dans la configuration sphère-plan pour les deux polarités (polarité de l'électrode inférieure).

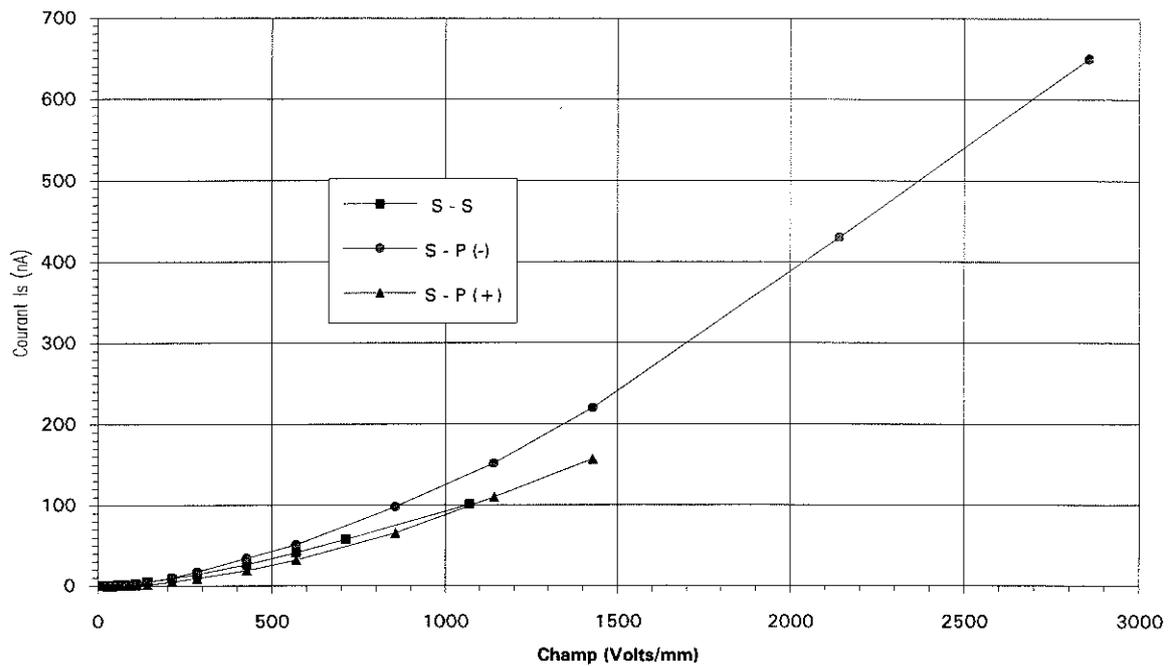
Nous constatons plusieurs choses. Premièrement la force est plus importante dans le cas S-S que dans le cas S-P (quelle que soit la polarité). Deuxièmement il y a une nette dissymétrie pour les deux polarités dans le cas S-P au-delà de 300 V/mm. Troisièmement nous ne pouvons pas aller au-delà de 1kV/mm dans le cas S-S et au-delà de 1,5 kV/mm dans le cas S-P lorsque l'électrode est à la polarité positive à cause de l'apparition de décharges

partielles (certainement au niveau de la zone de contact). Ces décharges ne sont pas surprenantes car nous avons vu qu'elles survenaient dans les huiles silicones et le fait qu'elles apparaissent plus tôt dans le cas de l'huile Marcol que dans le cas de l'huile TF50 qui sont toutes deux des huiles minérales, peut s'expliquer par le fait que l'huile Marcol est une huile "blanche" qui ne contient pas, ou peu, de composés aromatiques (benzène, toluène, etc.), composés qui sont connus pour augmenter la rigidité diélectrique des liquides isolants [Vuarchex]. Nous pouvons considérer que dans le cas S-S et S-P (+) les champs d'apparition des décharges sont proches mais il n'en est rien pour le cas S-P(-) pour lequel nous n'en avons pas obtenu (pour les tensions que nous avons appliquées).

Si nous regardons maintenant l'évolution des courants (Fig. II.IV.3) nous pouvons noter que dans le cas S-P(-) le courant est plus important que dans les autres cas. Ceci peut expliquer le fait que nous n'observons pas de claquages, en effet si le courant est plus élevé, le rayon  $\delta$  est plus grand et le champ électrique est alors plus faible ( $E \propto 1/\delta^2$ ). Ceci explique également pourquoi nous obtenons dans ce cas une force plus faible. Cette augmentation du courant provient très certainement d'une injection unipolaire survenant au niveau de l'électrode métallique. Cette observation rejoint celle de Atten *et al.* qui observaient que, pour des champs supérieurs à 1 kV/mm, le courant dans l'huile TF50 entre deux électrodes métalliques était plus important qu'entre deux électrodes de polymère [Atten *et al.*, 1995].

Nous avons sensiblement le même courant dans le cas sphère-sphère que dans le cas sphère-plan (+) avec une force plus importante dans le cas sphères-sphère. Nous attendions le contraire au niveau de la force mais l'expérience n'a été faite qu'une fois il est donc délicat de conclure sur ce point.

Nous venons à travers cette expérience de mettre en évidence l'importance des phénomènes d'injection dans l'interaction entre particules et électrodes dans un fluide électrorhéologique (certes sur un seul liquide mais les phénomènes d'injection sont très généraux et il est certain qu'ils surviennent avec la quasi-totalité des liquides utilisés en électrorhéologie). Dans notre cas nous avons mis en évidence les phénomènes d'injection survenant au niveau de l'électrode métallique mais il n'est pas exclu que ce type de phénomène survienne au niveau de l'interface polymère/liquide. Nous ne pouvons détailler ces processus, qui nécessiteraient une étude à part entière, mais nous pouvons mettre en avant l'importante conséquence pratique importante qui en découle. A savoir que dans un fluide ER nous trouverons forcément à une des extrémités des fibres en présence d'une injection ou même, dans le cas d'injection bipolaire, aux deux extrémités. Dans le cas où les phénomènes d'injection entre les particules sont négligeables (par rapport à ceux survenant au niveau des électrodes) nous aurons très certainement une rupture des fibres au niveau de l'une ou l'autre des électrodes.



**Figure II.IV.3** : Variation du courant  $I_s$  en fonction du champ dans la configuration sphère-sphère et dans la configuration sphère-plan pour les deux polarités (polarité de l'électrode inférieure).

Nous venons de voir que des processus d'injection intervenaient dans l'interaction entre une demi-sphère et un plan (du moins dans le cas de l'huile Marcol) ainsi que des décharges partielles ou micro-claquages. Il est très probable que dans le cas des fluides ER le volume de liquide entre les particules ne soit pas suffisant pour assurer une conduction volumique et que dans ce cas les processus d'injection devraient être prépondérants. Il se peut également que, vu l'intensité des champs électriques dans la zone de contact, des décharges partielles puissent survenir augmentant ainsi le transfert de charges entre les particules. Néanmoins les distances entre les surfaces des particules étant extrêmement faibles (de l'ordre du micron) nous ne pouvons pas nous prononcer plus avant sur ce phénomène car le comportement de très minces couches de liquide sous champ intense est un domaine très peu étudié. De plus la présence d'électrodes faiblement conductrices à la place d'électrodes métalliques vient limiter l'apport de charges susceptibles d'entretenir les décharges, ce qui peut expliquer le phénomène intermittent que nous observons.

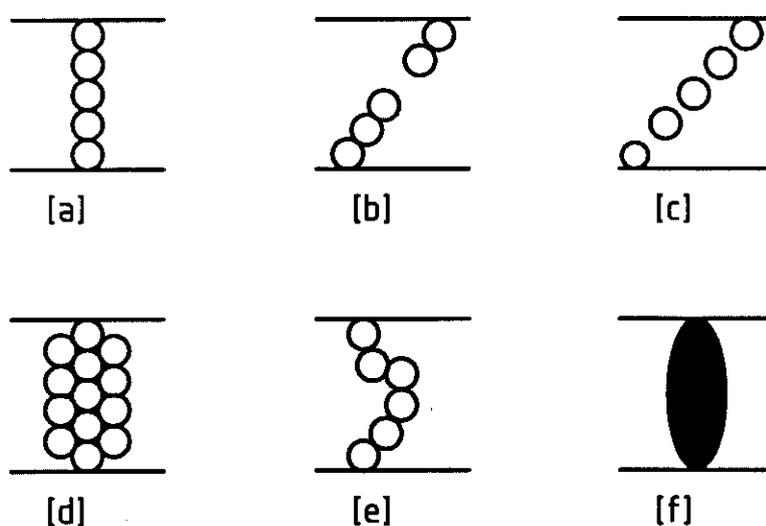
## Chapitre V

### Estimation de la contrainte seuil statique

Lorsque les caractéristiques principales d'un matériau sont des grandeurs macroscopiques il est intéressant de les déterminer à partir d'un certain nombre, le plus faible possible, de paramètres correspondant soit à ses propriétés physiques soit à sa structure. Ces déterminations font appel à des modèles analytiques qui le plus souvent nécessitent l'utilisation de calculs numériques. Nous allons dans ce chapitre essayer d'estimer la contrainte seuil statique des fluides ER en utilisant l'expression de la force en fonction de la distance de séparation que nous avons obtenue dans le chapitre III.

Dans le cas des fluides ER il faut distinguer deux aspects, premièrement la nature de l'interaction entre les particules et deuxièmement la structuration des particules. Deux approches différentes peuvent être considérées. Premièrement une approche statique ou quasi-statique dans laquelle les particules sont considérées comme étant alignées entre les électrodes suivant une structure donnée. Cette approche permet alors de calculer la contrainte seuil en considérant que les chaînes de particules sont cisailées et qu'elles s'inclinent d'un angle  $\theta$  avant de se rompre. Il semble évident que le résultat va dépendre de la structure choisie et de la façon dont elle va se déformer et se briser. Deuxièmement une approche dynamique où l'évolution des particules soumises à un champ électrique et à un cisaillement est observée en fonction du temps [Klingenberg *et al.*, 1989, 1991.a et 1991.b - Klingenberg, 1993 - Whittle, 1990 - Bonnacaze et Brady, 1992.a et 1992.b - Melrose et Heyes, 1993 - Melrose *et al.*, 1996]. Dans ce cas il faut étudier le comportement hydrodynamique d'un système complexe, considérer un grand nombre de particules et réaliser si possible des simulations en trois dimensions (3D). Actuellement ce type d'approche est peu utilisé et il n'existe pas de simulation traitant le problème dans son intégralité.

D'une manière schématique, en régime statique ou quasi-statique, il est possible de distinguer plusieurs cas de figure. Si on considère une chaîne de particules (Fig. II.V.1.a), le moindre cisaillement va provoquer, en l'absence de glissement sur les parois, la rupture de la chaîne. Deux cas sont alors possibles : premièrement la chaîne se brise en un seul point (Fig. II.V.1.b); deuxièmement la séparation se répartit le long de la chaîne (Fig. II.V.1.c) [Klingenberg et Zukoski, 1990 - Chen *et al.*, 1991]. Il faut remarquer que le premier cas est le plus probable puisque, les forces électrostatiques diminuant avec la distance, la moindre séparation provoque une diminution de l'interaction ce qui rend le cas de figure 28.c potentiellement instable. Dans le cas d'un agrégat (Fig. II.V.1.d), il faut considérer les interactions d'une particule avec celles des chaînes voisines [Gulley et Tao, 1993 - Anderson, 1994 - Bossis *et al.*, 1994.b]. Ensuite il est fort probable qu'au cours du cisaillement les chaînes glissent les unes par rapport aux autres ce qui entraîne la rupture des agrégats pour un angle supérieur à ceux obtenus dans les cas [b] et [c]. Il est possible d'obtenir également un angle de rupture de quelques degrés avec la configuration de la figure V.3.e. Enfin il est possible de considérer l'agrégat comme un seul élément (Fig. V.3.f) et de relier la contrainte à la variation globale d'énergie lorsqu'il est incliné [Halsey *et al.*, 1992 - Bossis *et al.*, 1992 - Lemaire *et al.*, 1996].



**Figure II.V.1** : Principales représentations schématiques des chaînes et des agrégats.

Dans les modèles utilisés jusqu'à présent pour estimer la contrainte seuil statique des fluides ER, la force élémentaire entre particules était calculée à partir de l'interaction entre dipôles. Nous nous plaçons maintenant dans le cas de champs continus et nous essayons, à partir de la relation donnant la variation de la force en fonction de la distance (Chapitre III), d'estimer la contrainte seuil statique des fluides ER. Nous rappelons ces relations :

$$F = 2\pi R^2 \varepsilon_L E_o^2 \left(1 + \frac{s}{2R}\right)^2 \left(\frac{R}{\delta}\right)^2 \left[ \left(1 + \frac{sR}{\delta^2}\right)^{-1} + \left(1 + \frac{sR}{\delta^2}\right)^{-2} \right]$$

où  $R/\delta$  est donné par la relation (12) (saturation du courant), la force  $F$  peut être également approchée par :

$$F = F_o \left[ 1 - b \frac{s}{R} \right]$$

où  $b$  et  $F_o$  ( $F$  pour  $s = 0$ ) sont donnés par :

$$F_o = 4\pi R^2 \varepsilon_L E_o^2 \left(\frac{R}{\delta_o}\right)^2$$

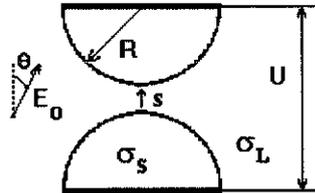
$$b = \frac{(1/2)(R/\delta_o)^2 - (7/4\beta)(R/\delta_o) - 1/2 + (13/4\beta)(\delta_o/R)}{1 - (11/2\beta)(\delta_o/R)}$$

En considérant que pour des suspensions ayant une fraction volumique importante la contrainte est proportionnelle au nombre de chaînes  $N$ , pour une fraction volumique  $\phi$  nous avons :

$$N = \frac{3\phi}{2\pi R^2}$$

Si les chaînes sont cisillées elles vont faire un angle  $\theta$  avec le champ électrique. Nous devons donc multiplier la distance par  $\cos\theta$  pour avoir la différence de potentiel entre les deux centres des sphères (Fig. II.VI.2) et  $\beta$  devient  $\beta = \sqrt{\frac{2E_o \cos\theta}{E_c}}$ . La contrainte de cisaillement  $\tau$  est alors donnée par [Atten *et al.*, 1996] :

$$\tau = NF \sin\theta = 3\phi \varepsilon_L \sin\theta (\cos\theta)^2 E_o^2 \left(1 + \frac{s}{2R}\right)^2 \left(\frac{R}{\delta}\right)^2 \left[ \left(1 + \frac{sR}{\delta^2}\right)^{-1} + \left(1 + \frac{sR}{\delta^2}\right)^{-2} \right] \quad (22)$$



**Figure II.VI.2 :**

Comme nous l'avons vu, il est possible d'envisager plusieurs modes de rupture des chaînes. Nous allons considérer successivement trois cas idéalisés (Fig. II.V.3 - 5) pour lesquels nous effectuerons une approche analytique en exprimant la contrainte seuil à partir de la relation (22) et une approche numérique en effectuant le calcul exact de (22).

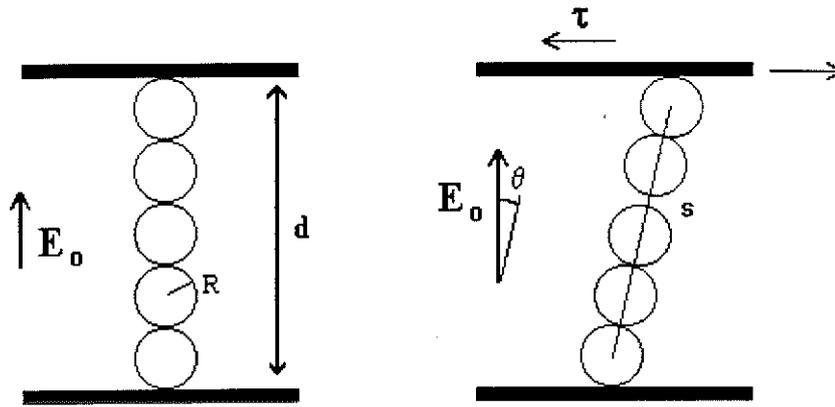


Figure II.V.3 : chaîne simple.

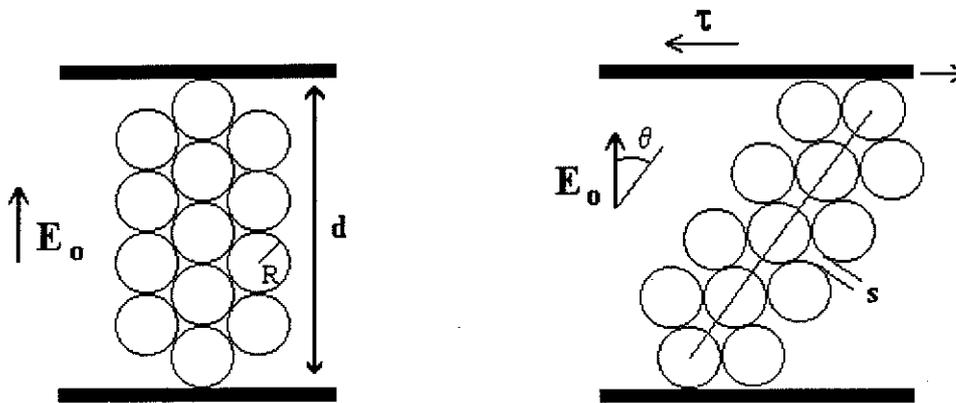


Figure II.V.4 : Fibre multiple.

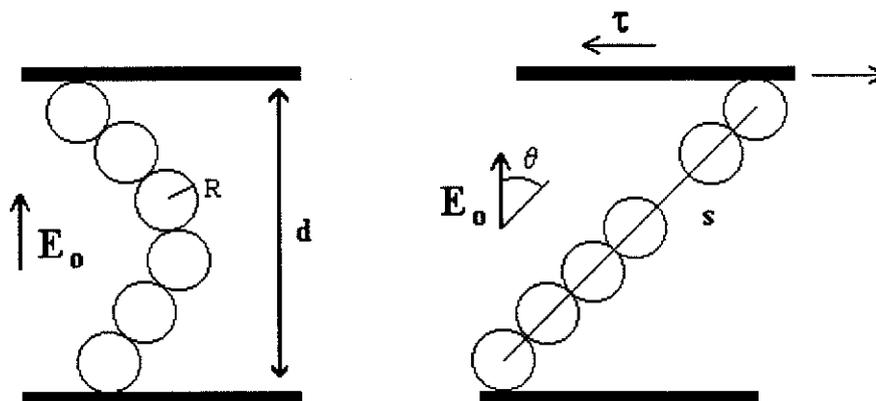


Figure II.V.5 : Chaîne flexible.

## V.1 Chaînes simples

Il est facile d'obtenir le rapport de la distance  $s$  de séparation et du rayon  $R$  des particules en fonction de l'angle  $\theta$  dans ce cas de figure; ceci nous donne :

$$\frac{s}{R} = \frac{d}{R} \cdot \frac{1 - \cos\theta}{\cos\theta}$$

Si l'on exprime alors la contrainte  $\tau$  en fonction de l'angle  $\theta$ ,  $R/\delta \propto \cos\theta^{-1/2}$ , nous obtenons à l'aide de la relation approchée :

$$\tau = B \left[ \cos\theta \sin\theta - b \frac{d}{R} (1 - \cos\theta) \sin\theta \right]$$

où  $B$  représente les termes ne dépendant pas de  $\theta$ . La contrainte seuil statique correspond alors au maximum de  $\tau$  en fonction de  $\theta$  et le calcul nous conduit à un angle  $\theta_m$  correspondant à la rupture et à une contrainte seuil donnés par [Atten *et al.*, 1996] :

$$\theta_m = \sqrt{\frac{2R}{3bd}}$$

$$\tau_s \approx 4\phi \epsilon_L E_o^2 \left( \frac{R}{\delta_o} \right)^2 \sqrt{\frac{2R}{3bd}} \quad (23)$$

La valeur de  $b$  est de l'ordre de  $\left( \frac{R}{\delta_o} \right)^2$  pour les valeurs des rapports  $\frac{R}{\delta_o}$  que nous rencontrons (5 à 15) et varie donc en  $E_o^{-1}$ . Ceci nous donne une variation de  $\tau_s$  suivant  $E_o^{3/2}$ .

A partir de l'expression du rapport  $s/R$  et de la relation (22) donnant la variation de la force en fonction de la distance  $s$ , nous réalisons un calcul numérique en faisant varier les différents paramètres ( $E_o$ ,  $\Gamma$ ,  $\epsilon_L$ ,  $R$ ,  $d/R$ ).

Dans cette configuration nous obtenons des contraintes maximales pour des angles faibles ( $\theta \leq 1^\circ$ ) car le moindre cisaillement provoque la rupture de la chaîne. La variation de la contrainte en fonction du champ électrique s'effectue suivant une puissance de 1,5 comme le prévoit la relation (23). Nous obtenons une augmentation de la contrainte avec la taille des particules proportionnellement à  $R^{+1/2}$ , ce que prévoit également la relation (23) et qui a été observé expérimentalement par Shih et Conrad [Shih et Conrad, 1994].

Le calcul correspondant au cas cellulose/TF50 (15%) dans le rhéomètre nous donne une contrainte maximale égale à 100 Pa avec :  $d = 1 \text{ mm}$ ,  $R = 25 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $E_o = 3 \text{ kV/mm}$ ,  $\epsilon_L = 2,2$  et  $\Gamma = 10^3$ . Cette valeur est plus faible que celle de 440 Pa obtenue expérimentalement. Une estimation de l'angle de rupture obtenu expérimentalement est de 10 à 20° ce qui est très supérieur à celui donné par notre calcul.

## V.2 Fibres multiples

Dans ce cas la variation de  $s/R$  suivant l'angle  $\theta$  est donné par :

$$\frac{s}{R} = 2 \frac{1 - \cos\theta}{\cos\theta}$$

Le même type d'approche que pour le premier cas nous conduit à [Atten *et al.*, 1996] :

$$\theta_m = \frac{1}{\sqrt{3b+2}}$$

$$\tau_s \approx 4\phi \epsilon_L E_o^2 \left( \frac{R}{\delta_o} \right)^2 \frac{1}{\sqrt{3b}} \quad (24)$$

Nous retrouvons une variation suivant  $E_o^{3/2}$  mais la valeur de la contrainte seuil semble quasiment indépendante du rayon des particules.

La valeur de  $s/R$  pour un angle donné est plus faible que dans le cas précédent ce qui nous permet d'avoir des angles correspondant au maximum de la contrainte plus importants que précédemment et ainsi d'obtenir des contraintes plus élevées car le  $\sin\theta$  qui est en facteur dans l'expression de  $\tau$  est alors plus important (pour les petits angles  $\theta \leq 5^\circ$  le sinus varie comme  $\theta$ ). Les calculs numériques nous donnent des variations en fonction de  $E_o$ ,  $\Gamma$  similaires à celles du cas précédent. L'angle de rupture est de l'ordre de 5-10° et contrairement au cas précédent la contrainte reste quasiment constante lorsque le rayon des particules augmente et décroît même légèrement. D'autre part comme la valeur de l'angle de rupture ne dépend pas du rapport  $d/R$  la contrainte est indépendante de la taille relative des particules.

L'estimation pour la suspension de cellulose/TF50 (15%) nous donne une valeur de 500 Pa proche de la valeur expérimentale mais l'angle de rupture est un peu faible 8° au lieu d'un angle de rupture compris entre 20 et 30°.

### V.3 Chaînes flexibles

Nous introduisons le paramètre  $m$  qui déterminera le nombre de particules rajoutées dans la chaîne par rapport au nombre de particules d'une chaîne simple  $d/2R$  (Fig. II.V.5);  $m$  correspond au pourcentage de particules supplémentaires. L'intérêt de ce modèle est de nous permettre d'arriver à des angles de rupture proches de ceux observés expérimentalement (20-30°). Nous définissons l'angle  $\varphi$  comme étant l'angle pour lequel la chaîne est tendue à la limite de la rupture :

$$\cos\varphi = \frac{1}{1+m}$$

Le rapport  $s/R$  varie alors de la façon suivante lorsque  $\theta > \varphi$  :

$$\frac{s}{R} = \frac{d}{R} \frac{\cos\varphi - \cos\theta}{\cos\theta} (1+m)$$

Des calculs numériques ont été réalisés en faisant varier la valeur de  $m$ . Nous prenons les valeurs suivantes pour les différents paramètres :  $R = 10^{-5}$  m,  $d/2R = 50$ ,  $E_0 = 2$  kV/mm,  $\epsilon_L = 2,2$  et  $\Gamma = 10^4$  et une fraction volumique de 33%. Dans notre hypothèse, où  $\tau \propto \phi$ , il faut tenir compte des particules supplémentaires qui ne forment pas de chaînes. La correction s'effectue en diminuant la fraction volumique de la valeur  $m$  (Tableau II.V.1).

$m$	0	2%	4%	6%	8%	10%
$\tau$ (Pa)	88	1960	2690	3100	3400	3600

**Tableau II.V.1** : Variation de la contrainte maximale en fonction de la valeur de  $m$ .

L'effet de  $m$  est très important lorsque l'on passe de  $m = 0$  à  $m = 2\%$  puis tend à s'atténuer. La variation de la contrainte en fonction du champ se fait suivant une puissance 1,5 quand  $m = 0$  (nous retrouvons le cas des chaînes simples) puis quasiment linéairement avec le champ lorsque  $m$  est différent de zéro. L'angle correspondant à la contrainte maximale est constant quels que soient  $E_0$ ,  $\Gamma$  et  $\epsilon_L$ , il ne dépend que de la valeur relative de  $m$  par rapport à  $d/2R$  ( $m = 6\%$ ,  $\theta = 19^\circ$  -  $m = 10\%$ ,  $\theta = 25^\circ$ ). L'évolution en fonction de  $R$  étant quant à elle proche de celle observée avec le modèle de chaînes multiples (pour un  $m$  constant). En fait tout se passe comme si la distance  $s$  n'intervenait pas et que le maximum de la contrainte était obtenu pour  $\theta = \varphi$ . Cette indépendance vis à vis de la distance  $s$  vient certainement du manque de finesse dans le pas de calcul (variation de  $0,2^\circ$  à chaque pas). Dans les deux premiers cas (V.1 et V.2) l'angle  $\theta$  était faible et  $\cos\theta$  variait peu alors que  $\sin\theta$  augmentait fortement. Comme nous avons la contrainte qui est proportionnelle à  $\tau \propto \sin\theta\cos\theta$  et  $s \propto (1-\cos\theta)/\cos\theta$  nous pouvions avoir une faible augmentation de  $s$  et une forte augmentation de la contrainte

ce qui nous donnait un maximum au-delà de la rupture. Dans le cas présent la séparation a lieu pour  $\theta = 20^\circ$  et dans ces conditions  $s/R$  varie rapidement [ $m = 6\%$  et  $d/2R = 50 : \theta = \varphi = 19,37^\circ \Rightarrow s/R = 0; \theta = 19,4^\circ \Rightarrow s/R = 1,95.10^{-2}; \theta = 19,6^\circ \Rightarrow s/R = 0,15$ ]; certainement suffisamment rapidement pour que l'augmentation de  $\sin\theta$  (autour d'une valeur de  $20^\circ$ ) ne puisse compenser la diminution de  $F$ . C'est pourquoi tout se passe comme si le maximum était obtenu pour  $\theta = \varphi$ . Dans ce cas également la valeur de  $d$  ne doit pas intervenir, ce que nous vérifions, et seuls les paramètres  $R$  et  $m$  déterminent l'interaction.

Dans le cas de la cellulose/TF50 nous obtenons différentes valeurs en fonction de la valeur de  $m$  (Tableau II.V.2) :

$m$	5%	10%	15%
$\tau$ (Pa)	1470	1840	1970
$\varphi$	$18^\circ$	$25^\circ$	$29^\circ$

**Tableau II.V.2** : Variation de la contrainte maximale en fonction de la valeur de  $m$ .

Nous constatons que pour un angle correspondant aux angles de rupture observés dans la pratique la contrainte obtenue est beaucoup plus élevée.

## V.4 Synthèse

Nous venons d'illustrer la forte dépendance que présente la contrainte seuil en fonction de la structure des chaînes ainsi que de l'angle de rupture. Comme nous l'avons évoqué dans la partie I cet aspect fait l'objet de l'attention d'autres équipes (Partie I §III.2). La configuration où les chaînes sont considérées comme simples ne semble pas plausible. Les résultats qu'elle donne ne correspondent pas au comportement rencontré avec les fluides ER; contraintes trop faibles et angles de rupture trop petits. La seconde configuration que nous avons envisagée est plus satisfaisante mais notre calcul ne considère pas les interactions entre les différentes chaînes constituant l'agrégat. De plus il paraît peu probable que la séparation se fasse comme nous l'avons indiqué. Dans ce cas les angles de rupture sont encore un peu faibles mais les contraintes obtenues tendent vers les valeurs mesurées.

La configuration pour laquelle les chaînes sont dites "flexibles" semble la plus intéressante : elle conduit à des angles de rupture proches de ceux observés expérimentalement en faisant varier le nombre de particules supplémentaires dans les chaînes. La contrainte obtenue est un peu plus élevée que celle observée dans les fluides ER. De plus

cette configuration est certainement parmi les trois proposées la plus réaliste. En effet, il est évident que la forme des particules n'est que très rarement sphérique et que leur taille ne correspond jamais à une situation telle qu'elles s'insèrent parfaitement dans l'entrefer (Fig. II.V.6). Il y aura donc toujours des particules "supplémentaires" qui lors du cisaillement viendront allonger la chaîne et ainsi permettre d'avoir des angles de rupture importants. Nous avons vu que quelques pour-cent suffisaient pour atteindre des angles proches de  $20^\circ$ .

Nous avons obtenu des variations de la contrainte, en fonction du champ électrique, linéaire ou suivant une puissance 1,5 selon les structures considérées. Dans le chapitre II de cette partie nous avons présenté des mesures sur des fluides ER à base de cellulose pour lesquels nous retrouvions suivant les valeurs de champ une variation linéaire ou suivant une puissance 1,5 de la contrainte seuil. Nous constatons que la variation de la force d'interaction entre deux particules en fonction du champ (modèle de conduction) et la variation de la contrainte seuil ne sont pas forcément identiques. Des résultats rapportés dans la littérature font état d'une variation linéaire de la contrainte seuil (ou avec une puissance proche de 1) [Sprecher *et al.*, 1987 - Stevens *et al.*, 1987 - Piolet, 1994].



**Figure II.V.6 :** Cellulose microcristalline utilisée pour les mesures dans le rhéomètre. La distribution varie de bâtonnets de longueur  $\cong 100 \mu\text{m}$  à des grains quasi-sphériques de rayon  $\cong 5 \mu\text{m}$  ( $1 \text{ cm} \cong 50 \mu\text{m}$ ).

Enfin si nous regardons le problème de l'attraction entre les chaînes et les électrodes nous constatons que le champ électrique est toujours perpendiculaire aux électrodes et donc que l'interaction entre les électrodes et les particules situées aux extrémités des chaînes est également toujours perpendiculaire aux électrodes. Il semble donc que dans ce cas la contrainte de cisaillement transmise par les chaînes soit liée au coefficient de frottement des particules sur les électrodes. Le fait qu'il y ait glissement ou non va dépendre de l'intensité de l'interaction, de l'angle d'inclinaison des fibres et du coefficient de frottement. L'état de surface des électrodes ainsi que d'autres paramètres tels que l'écrasement des particules vont

être prépondérants au niveau de l'intensité de la contrainte seuil des fluides ER, en particulier dans le cas d'agrégats épais pour lesquels la cohésion est certainement importante. D'autre part nous avons vu dans le chapitre IV que l'interaction entre une sphère et un plan pouvait être moins importante qu'entre deux sphères à cause de phénomènes d'injection (nous avons obtenu un facteur 3). Il n'est donc pas impossible que la rupture des fibres se produise au niveau des électrodes.

## Chapitre VI

### Influence de la fréquence du champ électrique et cas d'une conductivité de surface

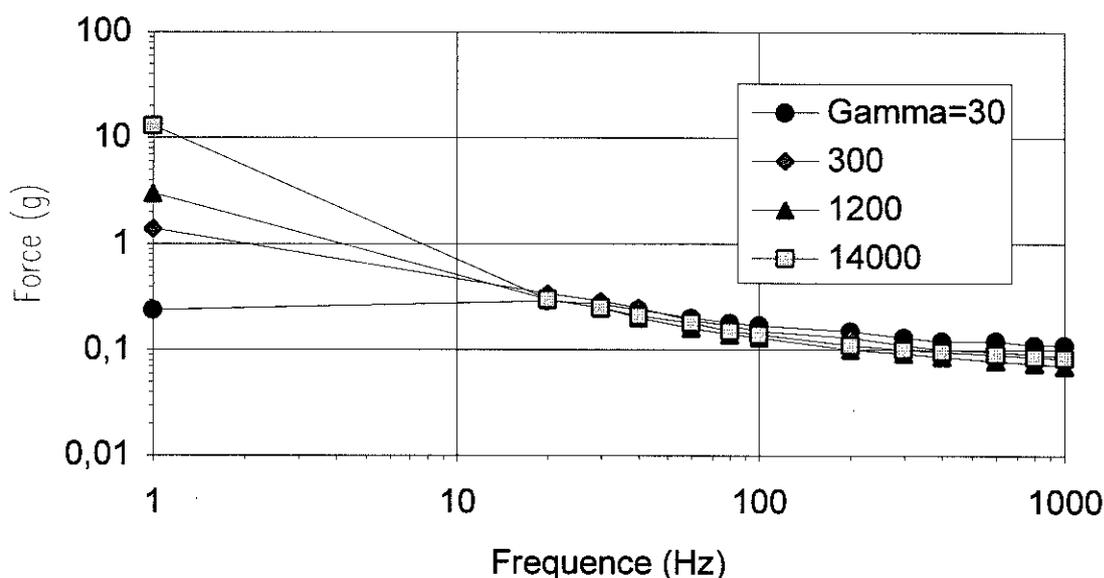
Nous abordons dans ce dernier chapitre l'influence de la fréquence et le cas d'une conductivité de surface. Ces deux points ne sont pas développés car ils constituent à eux seuls un vaste sujet d'étude.

#### VI.1 Influence de la fréquence

Nous avons jusqu'à présent considéré uniquement les champs électriques continus. Nous avons également vu dans le chapitre I l'existence d'une fréquence de coupure entre deux régimes bien définis : un régime dominé par les conductivités pour  $f < f_c$  et un régime dominé par les permittivités pour  $f > f_c$ . Si pour les champs continus le problème semble relativement simple, pour les fréquences plus élevées nous sommes confrontés à des problèmes de polarisation interfaciale qui sont certainement très complexes dans le cas des suspensions électrorhéologiques. Ces effets peuvent être abordés à l'aide de la théorie de Maxwell-Wagner [Anderson, 1992 - Davis, 1992.a - Hao et Xu, 1996]. Pour les fréquences proches de la fréquence de coupure il n'est pas impossible que des effets de couplage entre les deux phénomènes conduisent à un optimum de l'effet ER. Nous pouvons trouver dans la littérature des indications sur les deux types de comportement (fréquences élevées et basses fréquences) ainsi que sur le couplage des deux phénomènes. Randall *et al.* étudient différents fluides contenant des céramiques [Randall *et al.*, 1994]. Ils obtiennent des maximums de contrainte pour des fréquences comprises entre 5 et 50 Hz (ils ne précisent pas si leurs particules sont déshydratées). Garino *et al.* obtiennent un effet ER constant pour des fréquences supérieures à 10 Hz pour un fluide constitué de particules de BaTiO<sub>3</sub> dans du dodécane, le système ayant une fréquence de coupure inférieure à 10 Hz [Garino *et al.*, 1992]. Dans le cas où le liquide est un solvant beaucoup plus conducteur, de telle sorte que la fréquence de coupure soit égale

à 1000 Hz, ils observent une augmentation continue de la contrainte avec la fréquence. Enfin Kim et Klingenberg ont effectué une étude sur une suspension de particules d'alumine dans de l'huile silicone à laquelle ils rajoutent des surfactants [Kim et Klingenberg, 1994.a et b]. Ils observent un maximum de la contrainte seuil pour des fréquences comprises entre 10 et 100 Hz. Ils notent également que la réponse des suspensions comportant un additif est plus importante en amplitude et qu'elle décroît plus rapidement avec la fréquence que la réponse des suspensions contenant uniquement de l'eau. Remarquons qu'ils ne donnent pas les résultats pour les champs continus et qu'ils arrêtent leurs mesures à une fréquence d'environ 10 Hz.

Dans le cas de nos demi-sphères L2128 nous avons mesuré la constante diélectrique et nous trouvons une valeur proche de 35 pour 10Hz. Nous pouvons estimer que la fréquence de coupure ( $f_c = \sigma / 2\pi\epsilon$ ) se situe autour de 10 Hz. Nous avons effectué une série de mesures à l'aide d'un couple L2128/TF50 pour quatre valeurs de  $\Gamma$  (30, 300, 1200 et 14000). Les résultats sont présentés sur la figure II.VI.1 où la force pour le champ continu est reportée sur l'axe des ordonnées ( $f = 1$  Hz). Pour des raisons pratiques il est impossible de mesurer l'interaction entre les demi-sphères pour des fréquences inférieures à 20 Hz car, lorsque le champ électrique s'annule, le ressort écarte les demi-sphères d'une manière irréversible. Remarquons que dans le cas des fluides ER un problème identique se pose car pour des fréquences faibles la force reste quasiment nulle suffisamment longtemps pour que, si le cisaillement est important, il puisse briser les fibres et diminuer fortement, en moyenne, la contrainte seuil.



**Figure II.VI.1** : Variation de la force d'interaction entre deux demi-sphères L2128 dans de l'huile TF50 en fonction de la fréquence pour différentes valeurs du rapport des conductivités.

Nous remarquons qu'au-delà de 20 Hz les points sont quasiment confondus quelle que soit la valeur du rapport  $\Gamma$ . Nous sommes donc là dans un régime dominé par les permittivités et indépendant, semble-t-il, des conductivités. La dispersion obtenue pour les fréquences supérieures à 100 Hz n'est pas forcément significative car la force est très faible. Cependant il faut bien voir que le problème devient complexe car la variation de  $\sigma_L$  avec le champ électrique introduit une variation de la constante de temps du liquide et, d'autre part, la constante diélectrique du solide varie également dans cette gamme de fréquence [de 34 (10 Hz) à 15 ( $10^4$  Hz)]. Nos résultats illustrent également la possible existence d'un maximum en fréquence car pour  $\Gamma = 30$  la force obtenue pour une fréquence de 20 Hz est plus importante que la force obtenue en champ continu.

Il est clair qu'avec nos matériaux la force est très faible pour les champs alternatifs. Pour étudier la transition il faudrait repousser la fréquence de coupure vers des valeurs plus élevées et utiliser pour cela un matériau solide plus conducteur.

## **VI.2 Cas des matériaux multicouches**

Nous avons évoqué dans la première partie le fait que des matériaux possédant une couche superficielle "active" pouvaient donner un effet ER. Nous étendons notre modèle en configuration sphère-plan à des particules possédant une conductivité de surface.

### **VI.2.1 Cas d'une couche superficielle conductrice :**

Le principe de l'interaction entre particules d'un fluide ER que nous avons développé est basé sur le fait que les charges électriques se concentrent au niveau de la zone de contact provoquant ainsi une accumulation de charges en regard de signe opposé. Cette accumulation de charges crée une force d'interaction entre les particules comme dans le cas des armatures d'un condensateur. Il est possible de réaliser ceci avec une conductivité superficielle à la place d'une conductivité volumique. Nous pouvons dans ce cas reprendre le calcul concernant l'approximation de l'interaction entre deux demi-sphères en admettant qu'il y a saturation du courant dans le liquide.

Considérons une demi-sphère dont le coeur est isolant et qui est recouverte d'une couche de faible épaisseur  $d$  d'un matériau dont la conductivité est  $\sigma_s$ . Lorsque la conduction est assurée par une couche superficielle il est commode de définir la conductivité de surface  $\gamma_s$  (exprimée en  $\Omega^{-1}$ ) qui est donnée par :

$$\gamma_s = d \cdot \sigma_s$$

Le calcul de la résistance de la couche conductrice entre  $\theta = \pi/2$  et  $\theta = \theta_0$  conduit à la conductance de la sphère (Fig. II.VI.2) [Atten *et al.*, 1994] :

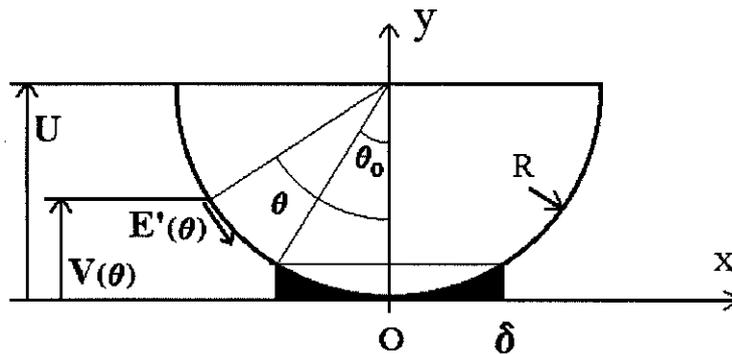
$$C_s = \frac{2\pi\gamma_s}{\text{Ln}\left(\frac{2R}{\delta}\right)}$$

En égalant cette expression avec celle obtenue pour la conductance du liquide, et en considérant qu'il y a saturation du courant dans le liquide (chapitre III), nous obtenons l'expression du rapport  $R/\delta$  dans le cas d'une conductivité de surface :

$$\frac{R}{\delta} \leq \sqrt{\frac{E_c}{2E_o}} \cdot \ln \left[ \frac{4KE_o\varepsilon_L}{\ln(2R/\delta)R^2} \frac{\gamma_s}{\sigma_L^2} \left(\frac{2}{\pi}\right)^{-1/2} \left(\frac{2E_o}{E_c}\right)^{5/4} \left(\frac{R}{\delta}\right)^{13/2} \right]$$

la force étant toujours donnée par l'expression :  $F \cong 4\pi R^2 \varepsilon_L E_o^2 \left(\frac{R}{\delta}\right)^2$

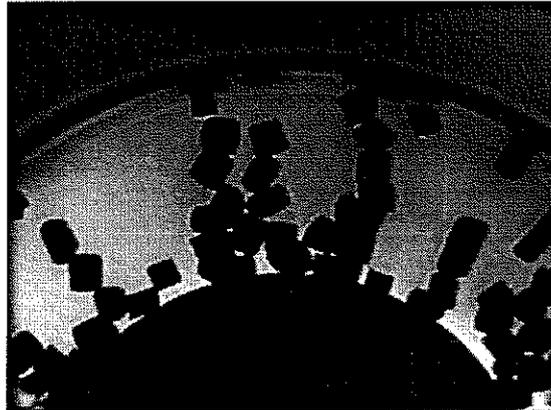
Nous obtenons encore une variation linéaire de la force avec le champ appliqué et l'expression de  $R/\delta$  diffère peu de celle obtenue dans le cas sphère-plan avec une conductivité volumique. Nous pouvons définir également un rapport des conductivités  $\Gamma_s = \frac{\gamma_s}{\sigma_L}$  et pour des valeurs identiques à celles obtenues avec une conductivité volumique nous devrions avoir pour la force des valeurs similaires.



**Figure II.VI.2** : Représentation schématique d'une demi-sphère conductrice en surface. Définition des notations.

Les quelques essais que nous avons pu réaliser pour obtenir des demi-sphères conductrices en surface se sont révélés infructueux. Nous n'avons donc pas pu vérifier si ceci nous permettait d'obtenir des forces d'interaction importantes. Néanmoins nous trouvons de nombreux exemples dans la littérature qui viennent confirmer le fait qu'une conductivité superficielle permet de produire un effet ER (il en est ainsi par exemple avec des particules de

polymère sulfoné qui pour une certaine épaisseur de la couche superficielle donnent les mêmes résultats que les particules conductrices en volume [Asako, 1996]). D'autre part nous avons constaté que des grains de polyamide isolant recouverts d'une couche de polyaniline conductrice, dans de l'huile silicone, conduisait à la formation des chaînes lorsqu'ils étaient soumis à un champ électrique (Fig. II.VI.3).



**Figure II.VI.3 :** Grains de polyamide recouverts de polyaniline conductrice dans de l'huile silicone.

### **VI.2.2 Cas d'une couche superficielle isolante :**

Nous venons d'évoquer le cas d'une conductivité superficielle mais il est possible également d'envisager des particules dont le coeur est conducteur et qui sont recouvertes d'une couche isolante (couche complète ou partielle). Cette couche maintient les matériaux conducteurs légèrement écartés mais nous avons vu que la force d'interaction variait peu lorsque la distance entre les particules était faible. Cette couche superficielle ne devrait donc pas diminuer notablement la force d'interaction entre les particules. Mais c'est au niveau du courant  $I_s$  que l'effet de cette couche est le plus important. En effet nous pourrions nous attendre à ce que le courant soit également peu différent comme dans le cas de nos demi-sphères mais ici nous remplaçons le liquide par un solide qui peut être plus isolant; en particulier la mobilité des ions est beaucoup plus faible. Néanmoins il ne faut pas non plus que cette couche soit trop isolante car dans ce cas des charges électriques provenant du liquide s'accumuleraient au niveau de la surface des particules et diminueraient le champ électrique dans le liquide. Dans ce cas le champ électrique se retrouverait alors sur les couches isolantes ce qui ne donnerait pas d'interaction entre particules. Ici aussi le problème devient complexe et nécessite une étude à part entière. Nous pouvons cependant avancer qu'il s'agit là d'une solution très intéressante car la couche superficielle limite le courant et en particulier elle

atténue les phénomènes d'injection. Nous trouvons des preuves de l'efficacité de cette démarche dans la littérature ou dans les brevets. Pollack obtient une diminution d'un facteur 8 du courant tout en augmentant légèrement la contrainte pour un fluide ER contenant des particules de polyaniline recouvertes d'une pellicule isolante [Pollack, 1994]. Dans un brevet, Block *et al.* décrivent une méthode pour recouvrir la polyaniline avec du polystyrène et ils obtiennent ainsi une diminution du courant d'un facteur 3 à 7 suivant le champ électrique [Block *et al.*, 1995]. Remarquons cependant que dans leur cas la contrainte diminue légèrement.

## Conclusions et perspectives

Nos investigations concernant l'interaction électrostatique entre particules d'un fluide électrorhéologique soumises à un champ électrique continu ont eu comme point de départ la constatation que dans ce cas la distribution du champ électrique était déterminée par les propriétés de conduction des matériaux. Ceci a conduit Félici, Atten et Foulc à développer un modèle permettant d'estimer la variation de l'interaction en fonction de divers paramètres (champ électrique, rapport des conductivités, permittivité). Le travail que nous venons de présenter avait pour objet d'une part de vérifier les hypothèses de base de ce modèle et d'autre part de l'étendre afin de permettre des prédictions quantitatives.

Plusieurs observations qualitatives nous ont permis de définir des conditions que doivent vérifier les conductivités des constituants solide et liquide pour obtenir un effet électrorhéologique. Premièrement il faut que les particules soient plus conductrices que le liquide; cette condition a été vérifiée sur des grains de taille millimétrique et sur des fluides ER. La deuxième condition concerne la conductivité des particules qui ne peut pas excéder une certaine valeur. En effet nous avons décrit d'une façon qualitative le comportement de particules relativement conductrices et nous avons montré qu'il était impossible de former des chaînes au-delà d'une certaine valeur de  $\sigma_s$ . Cette condition est vérifiée expérimentalement mais il est difficile de donner une valeur exacte de la conductivité limite des particules. Par contre si l'on fixe une limite concernant le courant maximal qui peut circuler à travers un fluide ER nous pouvons établir la fourchette de valeurs dans laquelle doit se situer la conductivité des particules si nous voulons obtenir un effet ER notable :

$$10^3 - 10^5 \sigma_L \leq \sigma_S \leq 10^{-7} - 10^{-5} S/m$$

L'idée de base du modèle est de diviser les demi-sphères en deux zones : une première zone loin du point de contact dans laquelle les demi-sphères sont considérées comme équipotentielles; une deuxième zone près du point de contact, appelée zone de contact au niveau de laquelle se produit la chute de potentiel dans le solide. Ce modèle prévoit qualitativement deux lois de variation suivant la valeur du champ électrique : une variation quadratique pour les champs faibles et une variation linéaire pour les champs élevés. Nous

avons pu vérifier ces deux comportements à l'aide d'une expérience à grande échelle sur des demi-sphères de polyamide immergées dans différents liquides dont on a fait varier la conductivité. Enfin le modèle prévoit une variation de la force suivant  $(U^2/Is)^2$ . Cette loi est indépendante de la façon dont se fait le passage du courant entre les particules. Cette variation est très bien vérifiée expérimentalement.

Nous avons alors amélioré l'approche en prenant uniquement en compte la conduction volumique du liquide diélectrique dans le cas de champs électriques élevés. Nous avons distingué deux cas : un premier cas pour lequel la conduction est fortement augmentée par la dissociation renforcée par le champ de paires d'ions présentes dans le liquide, la conduction est alors déterminée par un équilibre de dissociation des espèces ioniques présentes dans le liquide. Un deuxième cas, hors équilibre, pour lequel le courant dans le liquide est saturé. Cette approche plus quantitative nous permet d'estimer correctement l'ordre de grandeur et la variation de la force d'interaction entre nos deux demi-sphères pour différents liquides non polaires et différents rapports des conductivités  $\Gamma$ . Cependant nous avons rencontré quelques limitations : premièrement notre modèle ne semble pas s'appliquer au cas de l'Ugilec. Ce liquide faiblement polaire a une permittivité relative de l'ordre de 5 et nous pensons que des processus autres que la conduction volumique interviennent. D'autre part au-delà d'une certaine valeur du rapport  $\Gamma$  le courant qui circule à travers les demi-sphères ne dépend quasiment plus de la conductivité du liquide. Enfin dans le cas où le liquide est une huile silicone, la force d'interaction tend à saturer quand la conductivité du liquide est inférieure à une certaine valeur.

Un examen plus poussé nous a permis de constater que les champs électriques dans la zone de contact étaient de l'ordre de 100 à 200 kV/mm. Ces champs intenses sont susceptibles de provoquer des décharges partielles ou des claquages qui augmenteront la conduction du liquide et qui limiteront la valeur du champ dans la zone de contact et donc l'augmentation de l'interaction entre les demi-sphères. D'autre part nous ne pouvons pas négliger les phénomènes d'injection survenant aux interfaces solide/liquide qui peuvent augmenter la conduction du liquide dans le même ordre de grandeur que la dissociation renforcée. Des mesures de l'interaction entre une demi-sphère et un plan ainsi que des mesures avec des huiles silicones ayant des propriétés différentes ont confirmé que ces deux phénomènes se produisaient. Dans les fluides ER il est fort probable que les champs électriques au niveau des contacts entre les particules soient du même ordre de grandeur et que des décharges partielles ou des claquages surviennent. D'autre part des considérations liées à la taille des particules font apparaître que les processus d'injection devraient être dominants dans le passage du courant entre les particules des fluides ER.

Enfin dernière étape de notre étude, l'extension de notre modèle au cas où les particules sont séparées d'une distance faible nous a permis d'estimer la contrainte seuil statique des fluides ER. Nous avons montré qu'il était relativement facile d'obtenir avec la

configuration de chaînes flexibles un angle de rupture proche de celui observé expérimentalement. Le calcul de la contrainte à l'aide de notre modèle pour cette configuration nous a donné un ordre de grandeur comparable à l'expérience mais a surtout montré que, dans ce cas, la loi de variation de la contrainte avec le champ appliqué était similaire à celle de l'interaction de nos deux demi-sphères.

A l'issue de ce travail certaines questions restent sans réponses précises et plusieurs problèmes se présentent. Tout d'abord il apparaît possible de faire un calcul plus précis de l'interaction en intégrant les équations de l'électrocinétique d'une façon continue sur la surface de la sphère pour un mécanisme précis de conduction du liquide. Cette approche a été abordée par Tang *et al.* [Tang *et al.*, 1995.a et 1995.b]. Un tel calcul, plus exact, nous permettrait alors d'aborder le cas de matériaux multicouches (une couche semi-conductrice et une couche de conductivité proche de celle du liquide) qu'il n'est pas possible de traiter avec le modèle à deux zones.

Il serait très intéressant de réaliser des expériences avec un matériau plus conducteur que ceux que nous avons testés. Ceci nous permettrait de confirmer la validité du modèle et d'effectuer des mesures en champ alternatif. On peut même envisager d'examiner le cas des hautes fréquences pour lequel les permittivités jouent le rôle essentiel excepté dans une zone de contact où le champ très intense s'exerçant sur le liquide augmente fortement sa conduction. Une transposition du modèle à deux zones pourrait amener des résultats nouveaux.

Il nous reste maintenant à aborder le problème de l'injection et du claquage du liquide entre les particules. Ces deux phénomènes vont limiter la valeur du champ électrique dans la zone de contact et ainsi l'intensité de l'interaction entre les particules. Ce sont donc deux points importants qui doivent être étudiés en profondeur si nous voulons améliorer les performances des fluides ER. Malheureusement ces problèmes sont délicats à étudier et le fait que nous ayons des "électrodes" en polymère rend les choses encore plus délicates. De plus la conduction sous champ intense de très fines couches ( $< 1\mu\text{m}$ ) de liquide est très peu connue.



**REFERENCES**  
**BIBLIOGRAPHIQUES**



Adriani P.M., Gast A.P., *Phys. Fluids*, **31** (10), (1988) 2757.

Anderson R. A., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 81.

Anderson R. A., *Langmuir*, **10**, (1994) 2917.

Andre J.-J., "*Propriétés électriques des polymères et applications*", Groupe Français d'études et d'applications des Polymères (GFP) Vol.9, (1993) p. 63.

Armand M., "*Propriétés électriques des polymères et applications*", Groupe Français d'études et d'applications des Polymères (GFP) Vol.9, (1993) p. 113.

Asako Y., Ono S., Aizawa R., Kawakami T., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 352.

Asako Y., Ono S., Aizawa R., Kawakami T., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 342.

Atkin R.J., Shi X., Bullough W.A., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1441.

Atten P., *J. Electrostatics*, **30**, (1993) 259

Atten P., Foulc J.-N., Félici N., *Int. J. Mod. Phys. B*, **8** (20&21), (1994) 2731.

Atten P., Foulc J.-N., Benqassmi H., "*Progress in Electrorheology : Science and Technology of Electrorheological Materials.*", (Plenum Press, 1995) 231-244.

Atten P., Zhu K.Q., Boissy C., Foulc J.-N., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 710.

Bacri J.-C., Perzynski R., Salin D., *La Recherche*, **vol.18** n°192, (1987) 1150.

Bidan G., "*Propriétés électriques des polymères et applications*", Groupe Français d'études et d'applications des Polymères (GFP) Vol.9, (1993) p. 137.

Blackwood K.M., Block H., Rattray P., Tsangaris G., Vorobiev D. N., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994.a) 3.

Blackwood K.M., Tsangaris G., Vorobiev D. N., Block H., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994.b) 371.

Blanc R., "*Colloïdes et Interfaces*", école d'été - Aussois, sept. 1983, éd. Les éditions de physique, 1984.

Block H., Kelly J.P., *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **21**, (1988) 1661-1677.

Block H., Kelly J.P., Qin A., Watson T., *Langmuir*, **6**, (1990) 6-14.

Block H., Rattray P., Watson T., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 93.

Block, Hermann, Blackwood, Keith, Moray, brevet WO 95/01402, 12.01.1995.

Bloodworth R., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 67.

Bloodworth R., Wendt E., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 356.

Blossey D.F., *Phys. Rev. B*, **9**, (1974) 5183-5187.

Boissy C., Atten P., Foule J.-N., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 156.

Bonnecaze R.T., Brady J.F., *J. Chem. Phys.*, **96** (3), (1992.a) 2183.

Bonnecaze R.T., Brady J.F., *J. Rheol.*, **36** (1), (1992.b) 73.

Bossis G., Mathis C., Mimouni Z., Paparoditis C., *Europhys. Lett.*, **11** (2), (1990) 133.

Bossis G., Clercx H., Grasselli Y., Lemaire E., Meunier A., *27ème Congrès Annuel du GFR*, (Marseille-Nov. 1992) 17.

Bossis G., Grasselli Y., Lemaire E., Persello J., Petit L., *Europhys. Lett.*, **25** (5), (1994.a) 335.

Bossis G., Clercx H., Grasselli Y., Lemaire E., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994.b) 153.

Brooks D.A., *C432/010©IMEchE*, (1992) 125.

Brosseau C., Thèse Université Joseph Fourier de grenoble, 1989.

Calas R., Pascal P., Wyart J., "*Nouveau traité de chimie minérale : Tome VIII, deuxième fascicule*", éd. Masson et Cie, (1965) p.237.

Carlson J.D., Catanzarite D.M., St. Clair K. A., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 20.

Chantrell R.W., Bradbury A., Popplewell J., Charles S.W., *J. Appl. Phys.*, **53** (3), (1982) 2742.

Charle K.P. et Willig F., *Chem. Phys. Lett.*, **57**, (1978) 253.

Chen T.-J., Zitter R.N., Tao R., *Phys. Rev. Lett.*, **68** (16), (1992) 2555.

Chen T.-J., Zhang X., Zitter R.N., Tao R., *J. Appl. Phys.*, **74** (2), (1993) 942.

Chen Y., Sprecher A.F., Conrad H., *J. Appl. Phys.*, **70** (11), (1991) 6796.

Chen Y., Conrad H., *ASME Dev. Non-Newton. Flows*, **175**, (1993) 199.

- Chen Y., Conrad H., *Int. J. Mod. Phys. B*, **8** (20&21), (1994) 2895.
- Clercx H.J.H., Bossis G., *Phys. Rev. E*, **48** (4), (1993) 2721.
- Conrad H., Sprecher A.F., Choi Y., Chen Y., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1393.
- Conrad H., Chen Y., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 317.
- Couarraze G., Grossiord J.L., "*Initiation à la rhéologie*", éd. LAVOISIER - Tec & Doc, 1991.
- Davis L.C., *J. Appl. Phys.*, **72** (4), (1992.a) 1334.
- Davis L.C., *Phys. Rev. A*, **46** (2), (1992.b) R719.
- Davis L.C., *J. Appl. Phys.*, **73** (2), (1993) 680.
- Deinega Y.F., Vinogradov G.V., *Rheol. Acta.*, **23**, (1984) 636-651.
- Denat A., Thèse Université Joseph Fourier et INP de grenoble, 1982.
- Duclos T.G., *SAE Technical Paper Series*, 881134, (1989) 2.532
- Durand E., "*Electrostatique : Tome I, Les distributions*", éd. Masson et Cie., 1964.
- Evans L.F., Harness I., Kermode P.R., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 154.
- Fermigier M., Gast A.P., *J. Magn. Magn. Mater.*, **122**, (1993) 46-50.
- Filisko F. E., Radzilowski L.H., *J. Rheol.*, **34** (4), (1990) 539.
- Filisko F. E., Wang H.-R., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 329.
- Foulc J.-N., Félici N., Atten P., *C.R. Acad. Sci. Paris*, **t.314, Série II**, (1992) 1279.
- Foulc J.-N., Atten P., Félici N., *C.R. Acad. Sci. Paris*, **t.317, Série II**, (1993) 5.
- Foulc J.-N., Atten P., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 358.
- Foulc J.-N., Atten P., Boissy C., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 719.
- François B., "*Propriétés électriques des polymères et applications*", Groupe Français d'études et d'applications des Polymères (GFP) Vol.9, (1993) p. 87.
- Friedberg R., Yu Y.-K., *Phys. Rev. B*, **46** (10), (1992) 6582.
- Fujita T., Mochizuki J., Lin I.J., *J. Magn. Magn. Mater.*, **122**, (1993) 29.
- Gamota D.R., Filisko F.E., *J. Rheol.*, **35** (3), (1991.a) 399.

- Gamota D.R., Filisko F.E., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991.b) 1411.
- Garino T., Adolf D., Hance B., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 167.
- Gast A.P., Zukoski C.F., *Adv. Colloid Interface Sci.*, **30**, (1989) 153-202.
- Ginder J.M., Davis L.C., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 267.
- Ginder J.M., Ceccio S.L., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 319.
- Ginder J.M., Ceccio S.L., *J. Rheol.*, **39** (1), (1995) 211.
- Gosse J.-P., Gosse B., Denat, *Revue Générale de l'Electricité*, n°10, (1985) 733.
- Gow C.J., Zukoski C.F., *J. Colloid Int. Sci.*, **136** (1), (1990) 175.
- Grasselli Y., Bossis G., Lemaire E., *J. Phys. II France*, **4**, (1994) 253.
- Gulley G.L., Tao R., *Phys. Rev. E*, **48** (4), (1993) 2744.
- Halsey T.C., Toor W., *Phys. Rev. Lett.*, **65** (22), (1990) 2820.
- Halsey T.C., Martin J.E., Adolf D., *Phys. Rev. Lett.*, **68** (10), (1992) 1519.
- Hao T., Xu Y.-Z., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 55.
- Hartsock D.L., Novak R.F., Chaundy G.J., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1305.
- Hasted J.B., "Aqueous Dielectrics", éd. Chapman and Hall Ltd., 1973.
- Hill J.C., Steenkiste H.V., *J. Appl. Phys.*, **70** (3), (1991) 1207.
- Hill J.C., Vaz N.A., Klingenberg D.J., Zukoski C.F., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 280.
- Ishino Y., Maruyama T., Ohsaki T., Endo S., Saito T., Goshima N., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 354.
- Inoue A., Maniwa S., Ide Y., Oda H., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 385.
- Johnsen A., Rahbek K., *IEE J.*, **61** (320), (1923) 713.
- Jordan T.C., Shaw M.T., *IEEE Trans. Elec. Ins.*, **24** (5), (1989) 849.
- Jordan T.C., Shaw M.T., McLeish T.C.B., *J. Rheol.*, **36** (3), (1992) 441.

- Kanu R.C., Shaw M.T., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 92.
- Katsikopoulos P.V., Zukoski C.F., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994.a) 251.
- Katsikopoulos P.V., Zukoski C.F., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994.b) 385.
- Kawai A., Uchida K., Kamiya K., Gotoh A., Yoda S., Urabe K., Ikazaki F., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 13.
- Kim Y.D., Klingenberg D.J., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994.a) 84.
- Kim Y.D., Klingenberg D.J., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994.b) 389.
- Kimura H., Minagawa K., Koyama K., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 358.
- Kiyohito K., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (non publié).
- Klass D.L., Martinek T.W., *J. Appl. Phys.*, **38** (1), (1967.a) 67.
- Klass D.L., Martinek T.W., *J. Appl. Phys.*, **38** (1), (1967.b) 75.
- Klingenberg D.J., M.S. Thesis, University of Illinois (1988).
- Klingenberg D.J., van Swol F., Zukoski C.F. *J. Chem. Phys.*, **91** (12), (1989) 7888.
- Klingenberg D.J., Zukoski C.F., *Langmuir*, **6**, (1990) 15.
- Klingenberg D.J., van Swol F., Zukoski C.F., *J. Chem. Phys.*, **94** (9), (1991.a) 6160.
- Klingenberg D.J., van Swol F., Zukoski C.F., *J. Chem. Phys.*, **94** (9), (1991.b) 6170.
- Klingenberg D.J., Dierking D., Zukoski C.F., *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, **87** (3), (1991.c) 425.
- Klingenberg D.J., Zukoski C.F., Hill J.C., *J. Appl. Phys.*, **73** (9), (1993) 4644.
- Klingenberg D.J., *J. Rheol.*, **37** (2), (1993) 199.
- Kumakura Y., Watanabe T., Minagawa K., Koyama K., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 362.
- Kordonsky V.I., Korobko E.V., Lazareva T.G., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1427.
- Kordonsky V.I., Gorodkin S.R., Medvedeva E.V., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 22.

Kormann C., Laun H. M., Richter H. J., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 362.

Koyama K., Minagawa K., Yoshida T., Kuramoto N., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 100.

Koyama K., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 245.

Kraynik A. M., Bonnecaze R. T., Brady J.F., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 59.

Kuramoto N., Yamazaki M., Nagai K., Koyama K., Tanaka K., Yatsuzuka K., Higashiyama Y., *Thin Solid Films*, **239**, (1994) 169-171.

Langevin P., *Ann. Chim. Phys.*, **28**, (1903) 433.

Lacey D., Malins C., Taylor P. M., Hosseini-sianaki A., Varley C. J., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 630.

Lemaire E., Bossis G., *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **24**, (1991) 1473.

Lemaire E., Bossis G., Grasselli Y., *27ème Congrès Annuel du GFR*, (Marseille-Nov. 1992.a) 79.

Lemaire E., Bossis G., Grasselli Y., *Langmuir*, **8**, (1992.b) 2957.

Lemaire E., Bossis G., Volkova O., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 368.

Lingard S., Bullough W.A., Shek W.M., *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **22**, (1989) 1639.

Liu J., Lawrence E.M., Ivey M.L., Flores G.A., Bibette J., Richard J., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994.a) 172.

Liu J., Mou T., Flores G.A., Bibette J., Richard J., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994.b) 190.

Lyklema J., *"Colloïdes et Interfaces"*, école d'été - Aussois, sept. 1983, éd. Les éditions de physique, 1984.

Marshall L., Zukoski C.F., Goodwin J.W., *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 1*, **85** (9), (1989) 2785.

Martin J.E., Odinek J., Halsey T.C., *Phys. Rev. Lett.*, **69** (10), (1992) 1524.

Matsepuro A.D., Kordonsky V.I., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 325.

- Mc Leish T.C.B., Jordan T., Shaw M.T., *J. Rheol.*, **35** (3), (1991) 427.
- Melrose J.R., *Mol. Phys.*, **76** (3), (1992) 635.
- Melrose J.R., Heyes D.M., *J. Chem. Phys.*, **98** (7), (1993) 5873.
- Melrose J.R., Itoh S., Ball R.C., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 404.
- Mokeyev A.A., Korobko E.V., Vedernikova L.G., *J. Non Newton. Fluid Mech.*, **42**, (1992) 213.
- Monkman G.J., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1385.
- Miyamoto T., Ota M., *Appl. Phys. Lett.*, **64** (9), (1994) 1165.
- Onsager L., *J. Chem. Phys.*, **2**, (1934) 599.
- Ota M., Miyamoto T., *J. Appl. Phys.*, **74** (2), (1993) 938.
- Otsubo Y., Sekine M., Katayama S., *J. Colloid Int. Sci.*, **146** (2), (1991) 395.
- Otsubo Y., Sekine M., Katayama S., *J. Colloid Int. Sci.*, **150** (2), (1992.a) 324.
- Otsubo Y., Sekine M., Katayama S., *J. Rheol.*, **36** (3), (1992.b) 479.
- Oudet C., "Polymères : structure et propriétés", éd. Masson (1994), p.117.
- Petit L., *Ann. Phys. Fr.*, **16** (1991) 155-191.
- Pialet J. W., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 367.
- Purcell E.M., "*Berkeley cours de physique, vol.2 Electricité et Magnétisme*", ed. Armand Colin, 1973.
- Pollack R. A., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 373.
- Randall C.A., Miller D.V., Adair J.H., Bhalla A.S., *J. Mater. Res.*, **8** (4), (1993) 899.
- Randall C.A., McCauley D.E., Bowen C.P., ShROUT T.R., Messing C.P., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 60.
- Rosensweig R.E., "*Ferrohydrodynamics*", Cambridge University Press, 1985.
- Schubring A. W., Filisko F. E., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 369.
- Schultz J., "*Polymer materials science*" : Chap.10 - Electrical and Electro-Optical Behavior, ed. Prentice-Hall, Inc., (1974) p.419.
- See H., Doi M., *J. Phys. Soc. Jap.*, **60** (8), (1991) 2778.
- See H., Doi M., *J. Rheol.*, **36** (6), (1992) 1143.

- See H., Tamura H., Doi M., *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **26**, (1993) 746.
- See H., Sakurai R., Saito T., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 478.
- Shih Y.-H., Sprecher A.F., Conrad H., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 393.
- Shih Y.-H., Conrad H., *Int. J. Mod. Phys. B*, **8** (20&21), (1994) 2877.
- Shulman Z.P., Korobko E.V., Yanovski Y. G., *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, **33**, (1989) 181.
- Sprecher A.F., Carlson J.D., Conrad H., *Mat. Sci. Eng.*, **95**, (1987) 187.
- Sprecher A.F., Chen Y., Choi Y., Conrad H., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 142.
- Sproston J.L., Stanway R., Faghmous A., *Journées SEE - Applications de l'électrofluidodynamique*, Poitiers 1991, 67.
- Sproston J.L., Rigby S.G., Williams E.W., Stanway R., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **27**, (1994) 338.
- Stangroom J.E., *Phys. Technol.*, **14**, (1983) 290.
- Stangroom J.E., *J. Stat. Phys.*, **64**, (1991) 1059.
- Stanway R., Sproston J.L., Prendergast M.J., Case J.R., Wilne C.E., *J. Electrostatics*, **28**, (1992) 89.
- Stevens N.G., Sproston J.L., Stanway R., *J. Electrostatics*, **17**, (1985) 181.
- Stevens N.G., Sproston J.L., Stanway R., *Trans. ASME*, **54**, (1987) 456.
- Stipanovic A.J., Schoonmaker J.P., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 365.
- Sugimoto N., *Bull. JSME*, **20** (149), (1977) 1476.
- Tada H., Saito Y., Hirata M., Hyodo M., Kawahara H., *J. Appl. Phys.*, **73** (2), (1993) 489.
- Tamura H., Doi M., *J. Phys. Soc. Jap.*, **61** (11), (1992) 3984.
- Tamura H., See H., Doi M., *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **26**, (1993) 1181.
- Tanaka K., Yoshida T., Koyama K., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 289.
- Tanaka K., Koyama K., Watanabe T., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 339.
- Tang X.-L., Zhu K.-Q., Guan E., Wu X.-P., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 223.

- Tang X., Wu C., Conrad H., *J. Appl. Phys.*, **78** (6), (1995.a) 4183.
- Tang X., Wu C., Conrad H., *J. Rheol.*, **39** (5), (1995.b) 1059.
- Tang X., Chen Y., Conrad H., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 603.
- Tao R., Woestman J.T., Jaggi N.K., *Appl. Phys. Lett.*, **55** (18), (1989) 1844.
- Tao R., Sun J.M., *Phys. Rev. Lett.*, **67** (3), (1991) 398.
- Tao R., *Phys. Rev. E*, **47** (1), (1993) 423.
- Tao R., Jiang Q., *Phys. Rev. Lett.*, **73** (1), (1994) 205.
- Thurston G.B., Gaertner E.B., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1327.
- Treasurer U.Y., Filisko F.E., Radzilowski L.H., *J. Rheol.*, **35** (6), (1991) 1051.
- Tse K.-L., Shine A., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 383.
- Uejima H., *Jap. J. Appl. Phys.*, **11** (3), (1972) 319.
- Vuarchex P., "*Huiles et liquides isolants*", Techniques de l'ingénieur **D - 230**.
- Waring R.W., "*La physique des forces électrostatiques et leurs applications*", *Colloques Internationaux du Centre National de la Recherche Scientifique*, (éd. du CNRS, 1961) p. 117.
- Webber R. M., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 387.
- Weiss K.D., Carlson J.D., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 264.
- Weiss K. D., Duclos T. G., *Proc. 4th Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao & G.D. Roy ed. (World Scientific, Singapore, 1994) 43.
- Weiss K.D., Nixon D. A., Carlson J. D., Margida A. J., *Polymer Preprints*, **35** (2), (1994) 325.
- Weyenberg T.R., Piolet J.W., Petek N.K., *Proc. 5th Int. Conf. Electro-rheological Fluids, Magneto-rheological suspensions and associated technology*, (World Scientific, Singapore, 1996) 395.
- Whittle M., *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, **37**, (1990) 233.
- Whittle M., Bullough W.A., Peel D.J., Firoozian R., *Phys. Rev. E*, **49** (6), (1994) 5249.
- Winslow W.M., *J. Appl. Phys.*, **20**, (1949) 1137.
- Wong W., Shaw M.T., *IEEE/CEIDP*, (1990) 332.
- Xu B.C., Hass K.C., *J. Chem. Phys.*, **98** (3), (1993) 2258.

Xu Y.-Z., Liang R.-F., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1355.

Xu Y.-Z., Liang R.-F., Hao T., Zhang Q.-Z., Xu Z.-M., Chen Y.-H., *Proc. 3rd Int. Conf. Electrorheological Fluids*, R. Tao ed. (World Scientific, Singapore, 1992) 129.

Yang I.-K., Shine A., *J. Rheol.*, **36** (6), (1992) 1079.

Yatsuzuka K., Miura K., Kuramoto N., Asano K., *IEEE-IAS.93 Proc. Part III*, (1993.a) 1779.

Yatsuzuka K., Ahn Y.-S., Miura K., Asano K., (journal Japonais), 1993.b.

Yen W.S., Achorn P.J., *J. Rheol.*, **35** (7), (1991) 1375.

# ANNEXES



# ANNEXE A

Notions de rhéologie



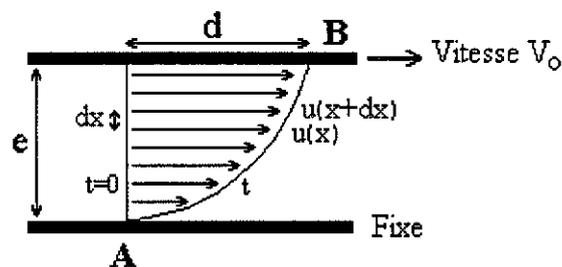
# NOTIONS DE RHEOLOGIE

Pour aborder l'étude des fluides électrorhéologiques il faut connaître la définition d'un certain nombre de grandeurs et termes de vocabulaire. Pour l'essentiel, cette annexe est basée sur : "Initiation à la rhéologie", G. Couarraze et J.L. Grossiord, Tec & Doc, LAVOISIER - 1991.

Les mots en italique et entre parenthèses correspondent aux termes anglais rencontrés dans la littérature; les mots en caractères gras sont ceux utilisés dans le domaine de l'électrorhéologie.

## **1 - Cisaillement et contrainte de cisaillement :**

Considérons une substance comprise entre deux plaques planes parallèles (les effets de bord ne sont pas considérés) (Fig. A-1). Si la plaque supérieure est déplacée le fluide immédiatement en contact avec cette plaque se déplace à la même vitesse (hypothèse de la couche limite). Le fluide au contact de la plaque inférieure reste immobile. On suppose qu'entre les deux couches il se forme une infinité de couches de vitesses différentes variant continûment. La déformation du matériau entre un instant zéro et un instant  $t$  s'effectue par un glissement des couches les unes par rapport aux autres, chaque couche ayant un déplacement  $U(x)$ . Ce mouvement ordonné et stratifié est un mouvement laminaire de cisaillement. Il est à la base du principe des rhéomètres de type Couette que nous décrirons plus loin et qui sont couramment utilisés en électrorhéologie.



**Figure A-1 :** Représentation schématique d'un cisaillement laminaire.

Au contact de deux couches adjacentes qui glissent l'une par rapport à l'autre il apparaît des forces de frottement qui s'exercent tangentiellement aux surfaces; elles sont

appelées forces de cisaillement. Rapportée à l'unité de surface cette force de cisaillement donne la **contrainte de cisaillement** (*shear stress*) :

$$\tau = \frac{dF}{dS}$$

$\tau$  est un paramètre essentiel en rhéologie, il s'exprime en pascal (Pa  $\Leftrightarrow$  newton/m<sup>2</sup>) dans le système MKSA, dans le système CGS il s'exprime en dyn/cm<sup>2</sup> (1 dyne = 10<sup>-5</sup> N) : 1 dyn/cm<sup>2</sup> = 10<sup>-1</sup> Pa.

## 2 - Déformation et vitesse de cisaillement :

Dans le cas de la symétrie plane on définit la déformation de cisaillement (*shear strain*), ou **cisaillement** (*strain*)  $\gamma$  par :

$$\gamma(x) = \frac{du(x)}{dx}$$

où  $u(x)$  est la distance parcourue par la couche située en  $x$  pendant un intervalle de temps  $t$  (Fig. A-1).  $\gamma$  est sans dimension.

Si  $e$  est faible devant les dimensions du plan on peut écrire que  $\gamma = d/e = \text{constante}$  et dans ce cas la courbe joignant A et B est une droite.

La vitesse de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , ou **taux de cisaillement** (*shear rate*), est la dérivée par rapport au temps de la déformation de cisaillement, ceci nous donne :

$$\dot{\gamma} = \frac{d}{dt} \cdot \frac{du(x)}{dx} = \frac{d}{dx} \cdot \frac{du(x)}{dt} = \frac{dv(x)}{dx}$$

où  $v(x)$  est la vitesse de la couche  $x$ ,  $\dot{\gamma}$  s'exprime en s<sup>-1</sup>.

Dans le cas où  $e$  est petit :  $\dot{\gamma} = V_0/e = \text{constante}$ .

## 3 - Rhéogrammes :

Il existe une relation entre la déformation de cisaillement et la contrainte de cisaillement, c'est l'équation d'état du matériau. Elle détermine les propriétés rhéologiques du matériau. Les courbes qui traduisent graphiquement l'équation rhéologique d'état sont appelées rhéogrammes. On peut donc tracer  $\tau = f(\gamma)$ ;  $\tau = f(\dot{\gamma})$ ;  $\tau = f(t)$  ou  $\gamma = f(t)$ . Ces rhéogrammes sont obtenus expérimentalement à l'aide de rhéomètres. En électrorhéologie les rhéogrammes les plus rencontrés sont :  $\tau = f(\dot{\gamma})$  et  $\tau = f(\gamma)$ .

#### 4 - La viscosité :

La viscosité dynamique du fluide est donnée par la relation :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}}$$

Elle est aussi appelée **viscosité apparente**. Elle s'exprime en pascal seconde (Pa.s) dans le système MKSA et en poise (P) dans le système CGS : 1 Pa.s = 10 P.

En électrorhéologie on peut également rencontrer d'autres définitions. Si la viscosité apparente de la suspension sans champ électrique est notée  $\eta(o)$  et avec champ  $\eta(E)$  on peut alors définir :

La viscosité relative  $\eta_r = \eta(E)/\eta(o)$  (sans dimension).

L'électroviscosité  $\eta = \eta(E) - \eta(o)$

#### 5 - La viscoélasticité :

En électrorhéologie il arrive fréquemment que le fluide soit soumis à des déformations sinusoïdales (dans des amortisseurs par exemple). Il nous faut donc étudier le matériau de façon dynamique en lui imposant une déformation périodique à l'aide d'un rhéomètre dynamique.

Une généralisation des équations linéaires d'un matériau viscoélastique  $\tau = G.\gamma$  où  $G$  est le module de cisaillement, ou de rigidité, ou encore le **module élastique** (*elastic modulus*) donne l'équation complexe :

$$\tau(\omega) = G(\omega).\dot{\gamma}(\omega)$$

où  $\omega$  est la pulsation de la déformation.  $G(\omega)$  est appelé module élastique complexe.

$G(\omega)$  se décompose en deux parties : une partie réelle  $G'(\omega)$  et une partie imaginaire  $G''(\omega)$ .

$$G(\omega) = G'(\omega) + iG''(\omega)$$

$G'(\omega)$  est le **module de conservation** (*storage modulus*) et  $G''(\omega)$  est le **module de perte** (*loss modulus*).

Pendant la déformation, la contrainte extérieure appliquée met en jeu une puissance mécanique par unité de volume  $P = \tau.\dot{\gamma}$ . Cette puissance se décompose en deux parties.

- Une partie emmagasinée dans le matériau sous forme d'énergie potentielle élastique (récupérable lors du retour à l'état initial) proportionnelle à  $G'(\omega)$ .

- Une partie, dissipée par les frottements visqueux, proportionnelle à  $G''(\omega)$ .  
 $G'(\omega)$  et  $G''(\omega)$  représentent donc en quelque sorte des "mesures" des énergies emmagasinées (conservation) et dissipée (perte).

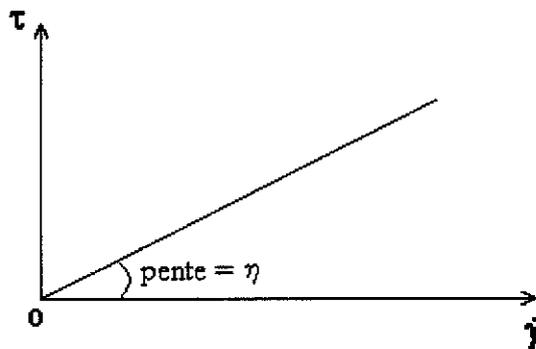
Les grandeurs définies dans ce paragraphe seront très peu utilisées au cours de notre travail mais elles sont fréquemment rencontrées dans la littérature traitant des fluides électrorhéologiques.

## **6 - Les modes d'écoulement :**

Nous abordons ici les différents types d'écoulements que l'on peut rencontrer avec des fluides électrorhéologiques. C'est-à-dire les différentes lois  $\tau = f(\dot{\gamma})$  susceptibles de décrire les rhéogrammes expérimentaux obtenus avec des fluides ER.

### **- Les liquides linéaires (newtonien) :**

Ils sont caractérisés par la relation  $\tau = \eta \cdot \dot{\gamma}$  où  $\eta$  est la viscosité du liquide qui reste constante quel que soit  $\tau$  et  $\dot{\gamma}$ . Le rhéogramme  $\tau = f(\dot{\gamma})$  d'un liquide newtonien est donc une droite passant par l'origine de pente égale à la viscosité  $\eta$  de la suspension (Fig. A-2).



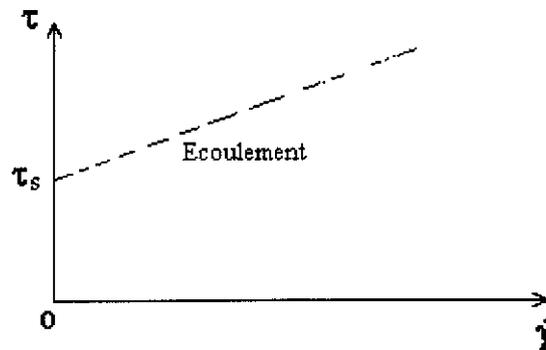
**Figure A-2 :** Rhéogramme d'un liquide newtonien de viscosité  $\eta$ .

Les fluides ER sont assimilés à des liquides newtoniens lorsqu'ils ne sont pas soumis à un champ électrique.

### **- Les liquides plastiques :**

Les liquides plastiques sont des liquides non-newtoniens, c'est-à-dire dont la viscosité apparente n'est pas constante, elle peut varier en fonction de  $\tau$ ,  $\dot{\gamma}$ , ou du temps. En particulier les liquides plastiques ne s'écoulent qu'à partir d'une valeur  $\tau_c$  de la contrainte de cisaillement

appelée contrainte seuil d'écoulement, ou **contrainte seuil** (*yield stress*). Les rhéogrammes de ces liquides ont donc la forme suivante (Fig. A-3) :



**Figure A-3** : Rhéogramme d'un liquide plastique.

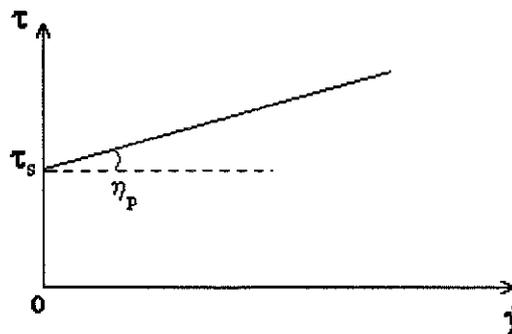
Le seuil d'écoulement correspond à l'effort nécessaire pour vaincre des forces de cohésion au sein du liquide. Les fluides ER ont un comportement de liquide plastique lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. Les forces de cohésion sont dues à l'interaction entre les particules et  $\tau_c$  correspond à la contrainte qu'il faut appliquer pour pouvoir briser les chaînes afin de permettre l'écoulement du fluide. Cette notion de seuil d'écoulement est une approximation car dans le cas des fluides ER les fibres s'inclinent avant de se rompre et donc il y a une petite déformation avant la rupture des chaînes. Néanmoins cette déformation est négligeable devant celle provoquée par l'écoulement au-delà de  $\tau_c$ .

Les fluides ER sont fréquemment assimilés à des liquides de Bingham dont l'équation rhéologique d'état s'écrit :

$$\tau = \tau_c + \eta_p \cdot \dot{\gamma}$$

et où  $\eta_p$  est la viscosité plastique, dans le cas des fluides ER la viscosité plastique est confondue avec  $\eta_s$  la viscosité de la suspension sans champ électrique.

La viscosité apparente  $\eta = \tau / \dot{\gamma}$  des liquides de Bingham est décroissante avec  $\dot{\gamma}$ . C'est un liquide plastique idéal dont le rhéogramme est donné par la figure A-4 :

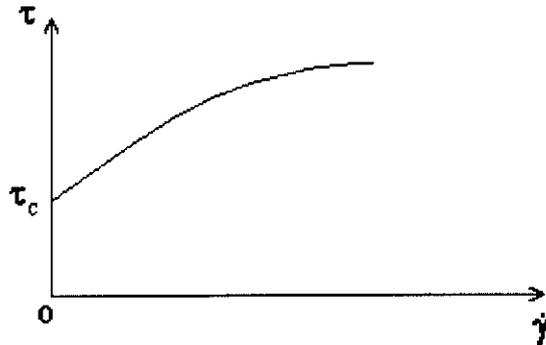


**Figure A-4** : Rhéogramme d'un liquide plastique de Bingham.

Une autre relation, caractérisant les liquides plastiques fluidifiants, susceptible d'être rencontrée dans le domaine de l'électrorhéologie est la relation de Casson :

$$\tau^n = \tau_c^n + (\eta_p \dot{\gamma})^n$$

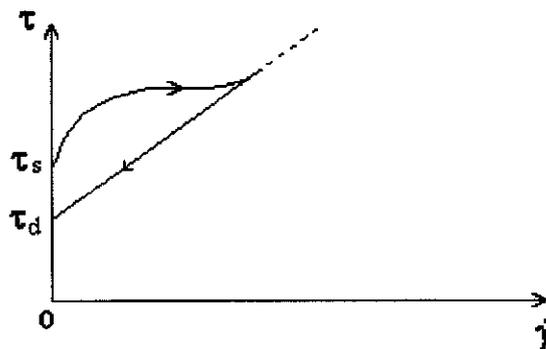
Le rhéogramme correspondant est donné par (Fig. A-5) :



**Figure A-5** : Rhéogramme d'un liquide plastique de Casson.

- Thixotropie :

Certains liquides peuvent avoir un écoulement dont les caractéristiques dépendent des traitements subits antérieurement. Les rhéogrammes obtenus présentent donc une hystérésis. Les fluides électrorhéologiques ont cette caractéristique; ils sont thixotropes. En particulier ce sont des corps plastiques thixotropes avec modification de la contrainte seuil dont les rhéogrammes typiques sont de la forme (Fig. A-6) :



**Figure A-6** : Rhéogramme typique d'un fluide ER.

Ce phénomène de thixotropie est lié à des modifications de la structure microscopique du fluide. Cependant après suppression de  $\dot{\gamma}$  et un temps de repos suffisant le fluide retrouve ses propriétés initiales.

Il y a donc deux contraintes seuils  $\tau_s$  et  $\tau_d$ .  $\tau_s$  sera appelée **contrainte seuil statique** (*static yield stress*) et  $\tau_d$  **contrainte seuil dynamique** (*dynamic yield stress*).

La relation de Bingham pour un fluide électrorhéologique s'écrit donc :

$$\tau = \tau_d + \eta_s \cdot \dot{\gamma}$$

## 7 - Les rhéomètres :

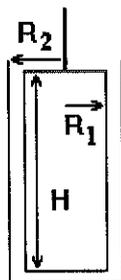
Les appareils destinés à étudier les propriétés rhéologiques des corps sont appelés d'une manière générale rhéomètres. Ceux utilisés dans le domaine de l'électrorhéologie sont des rhéomètres à régime permanent, c'est-à-dire que la substance étudiée est soumise à un mouvement de cisaillement qui ne dépend pas du temps. On peut distinguer deux types de rhéomètres :

- *Les rhéomètres de type Couette* : Dans ces rhéomètres la substance étudiée est cisailée entre deux surfaces solides, l'une au repos, l'autre mobile. La partie mobile impose le cisaillement qui se répartit dans l'ensemble de l'échantillon. Ce type de cisaillement se retrouve dans les embrayages ou certains types d'amortisseurs.

- *Les rhéomètres de type Poiseuille* : Le mouvement de cisaillement est engendré par l'application aux extrémités d'un tube cylindrique d'une différence de pression. Le liquide s'écoule alors plus ou moins dans le cylindre suivant sa viscosité. En électrorhéologie on retrouve ce type de cisaillement dans les dispositifs contenant des pistons ou dans les vannes.

### 7.1 Les rhéomètres à cylindres rotatifs :

Ce sont les plus fréquemment employés dans le domaine de l'électrorhéologie. De type Couette, ils sont constitués de deux cylindres coaxiaux de rayon  $R_1$  et  $R_2$  et de hauteur  $H$  (Fig. A-7)



**Figure A-7** : Schéma d'un rhéomètre à cylindre rotatif.

Un des cylindres est fixe et l'autre est animé d'une vitesse de rotation angulaire  $\omega_o$ . La substance se décompose en couches cylindriques coaxiales. La mesure de  $\tau$  est basée sur la

mesure du couple M nécessaire pour imposer le cisaillement. Si l'entrefer e est petit devant le rayon R1 ( $e/R1 < 0,1-0,15$ ) la contrainte  $\tau$  peut être considérée comme constante dans tout l'entrefer et approximée par :

$$\tau = \frac{M}{4\pi h} \cdot \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_1^2 \cdot R_2^2}$$

Le cisaillement peut quant à lui être considéré également comme constant et approximé par :

$$\dot{\gamma} = \frac{\omega_o}{\ln\left(\frac{R_1}{R_2}\right)}$$

ou par :

$$\dot{\gamma} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \cdot \omega_o$$

les deux relations étant équivalentes dans le cadre de notre approximation.

Pour les entrefers plus importants il est possible de déterminer le comportement rhéologique de la substance soit en faisant l'hypothèse d'un mode d'écoulement soit en utilisant des méthodes générales très spécialisées. Remarquons que dans ce cas pour les liquides plastiques, et donc les fluides ER, il existe un rayon  $R_c$  à partir duquel le fluide va s'écouler. Si  $R_1 < R_c < R_2$  une partie seulement du fluide s'écoule.

Une autre approximation est nécessaire, le cylindre intérieur se termine souvent par un cône afin de diminuer les effets d'extrémité qui perturbent l'écoulement en couches cylindriques coaxiales. Dans le cas des fluides ER le champ électrique n'est plus appliqué de manière uniforme dans cette zone. Cependant la surface du cône étant faible devant celle de la partie utile du cylindre on peut la négliger.

## 7.2 Les rhéomètres dynamiques (ou oscillants) :

Dans ce type de rhéomètre les échantillons étudiés sont soumis à des mouvements laminaires de cisaillement d'amplitude  $\gamma_o$  et de fréquence  $\omega$ . On peut ainsi étudier le module élastique complexe  $G(\omega)$ .

# ANNEXE B

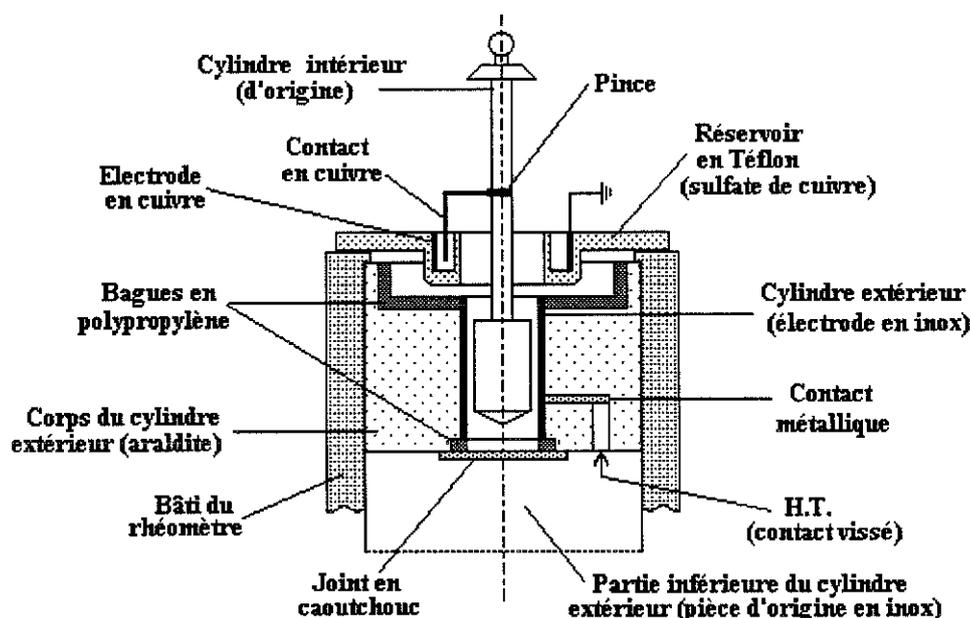
Dispositifs expérimentaux



## A) PLATE-FORME DE MESURE ELECTORRHEOLOGIQUE

Comme nous l'avons vu au paragraphe I.4, le dispositif le plus communément utilisé pour mesurer les caractéristiques des fluides ER est le rhéomètre à cylindres coaxiaux. Jusqu'à récemment il n'existait pas de matériel spécialement conçu pour l'électrorhéologie et il fallait donc modifier la cellule de mesure pour appliquer la haute tension.

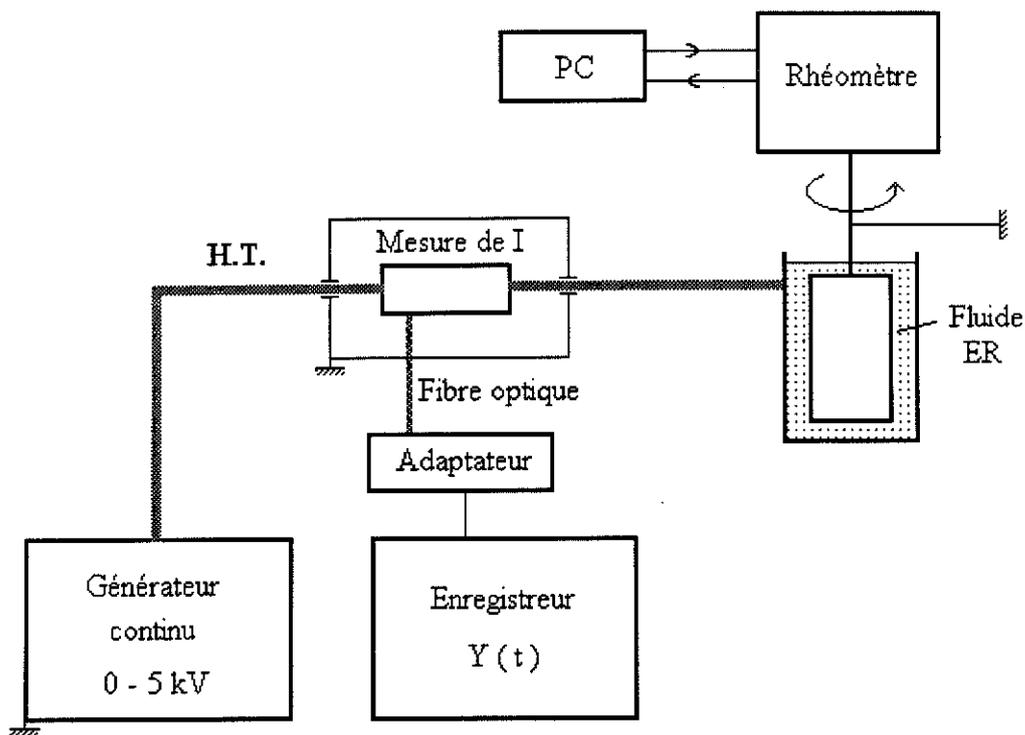
Le rhéomètre que nous utilisons est un rhéomètre à cylindres coaxiaux (Mettler Rhéomat 115A). Après plusieurs essais et pour des raisons pratiques nous avons décidé de porter le cylindre extérieur (fixe) à la haute tension. Un cylindre extérieur isolé électriquement du reste du rhéomètre a été fabriqué à cet effet (Fig. B1). Ce cylindre est constitué de deux parties. Une partie supérieure qui correspond à la cellule de mesure et une partie inférieure qui sert essentiellement au centrage et à la fixation du cylindre extérieur sur le bâti du rhéomètre. Nous avons modifié uniquement la partie supérieure. Le cylindre intérieur (tournant) d'origine a été conservé en raison de son excellent centrage mécanique. Le retour du courant se fait grâce à un contact fixé sur l'axe du cylindre intérieur et trempant dans une solution conductrice de sulfate de cuivre.



**Figure B1** : Modifications de la cellule de mesure pour l'application d'une haute tension (jusqu'à 5 kV) entre les cylindres coaxiaux.

Les grandeurs rhéologiques mesurées ou calculées, viscosité, contrainte, vitesse de cisaillement sont fournies par le logiciel de pilotage du rhéomètre. Le courant traversant la cellule est directement mesuré sur la haute tension. En effet, le cylindre intérieur étant relié à la masse par l'intermédiaire de son système d'entraînement, il est impossible de mesurer le courant traversant la cellule à l'aide d'un contact sur le cylindre intérieur car une partie du courant passe à travers le rhéomètre.

Le schéma de principe de la plate-forme de mesure est donné figure B2.



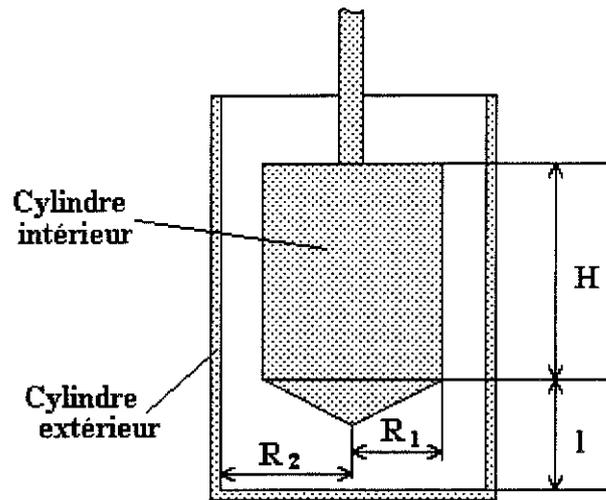
**Figure B2 :** Plate-forme de mesure Electrorhéologique.

### Rhéomat 115A :

Ce rhéomètre à vitesse imposée est piloté par un micro-ordinateur. Le logiciel permet de définir une loi de commande en gradient de vitesse ( $\dot{\gamma}$ ). Il calcule la contrainte de cisaillement ( $\tau$ ) ainsi que la viscosité ( $\eta$ ). La plage de variation du gradient de vitesse  $\dot{\gamma}$  est de 0,1 à 1000  $s^{-1}$ .

Nous utilisons deux cellules dont les caractéristiques sont données dans le tableau ci-après (voir également la figure 3), S représente la surface de la partie active du cylindre intérieur et V le volume de remplissage du fluide. Les dimensions des cellules sont normalisées :  $L/R_1 = 1$ ;  $H/R_1 = 3$ ;  $(R_1/R_2)^2 = 0,850$  (figure B3).

Cellule	R2 (mm)	R1 (mm)	H (mm)	e (mm)	S (cm <sup>2</sup> )	V (cm <sup>3</sup> )	$\tau_{\max}$ (Pa)
Din 125	13,55	12,5	37,5	1,05	29,5	17,5	1040
Din 114	7,59	7	21	0,59	9,3	3,4	6000



**Figure B3** : Cotes de la cellule de mesure.

La contrainte et le taux de cisaillement sont calculés à l'aide des formules suivantes :

$$\tau = \frac{M}{4\pi H} \cdot \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_1^2 \cdot R_2^2}$$

$$\dot{\gamma} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \cdot \omega_0$$

où  $\omega_0$  est la vitesse angulaire de rotation du cylindre intérieur et  $M$  le couple appliqué.

#### Dispositif électrique :

La haute tension est appliquée entre les deux cylindres par un générateur de tension continue (0-5 kV - MESCO). Sur le câble amenant la H.T. on trouve une résistance de protection (5 M $\Omega$ ) et le dispositif de mesure du courant. Ce dispositif qui mesure le courant dans le câble H.T. (gamme de 1 nA à 1 mA) est relié par une fibre optique à un boîtier adaptateur permettant la visualisation et l'enregistrement du courant.

### **Préparation des fluides :**

Pour la préparation de nos fluides, les poudres à conduction intrinsèque sont préalablement séchées sous vide ( $\sim 24$  h,  $80\text{ C}^\circ$ ), la cellulose est utilisée telle quelle (fraction massique d'eau 6%) et les liquides ne subissent pas de conditionnement particulier.

L'obtention d'une suspension stable (sans sédimentation) est importante si l'on veut obtenir des mesures reproductibles et fiables : la densité du liquide porteur doit être la plus proche possible de celle des particules. La nature du fluide n'ayant, à conductivité équivalente, que peu d'influence sur les caractéristiques d'un fluide ER, on peut réaliser des mélanges de fluides de densités différentes pour obtenir une densité proche de celle des particules. En cas d'impossibilité, il faut alors appliquer le champ le plus tôt possible dans la cellule du rhéomètre afin de limiter la sédimentation (le champ doit être maintenant entre les mesures).

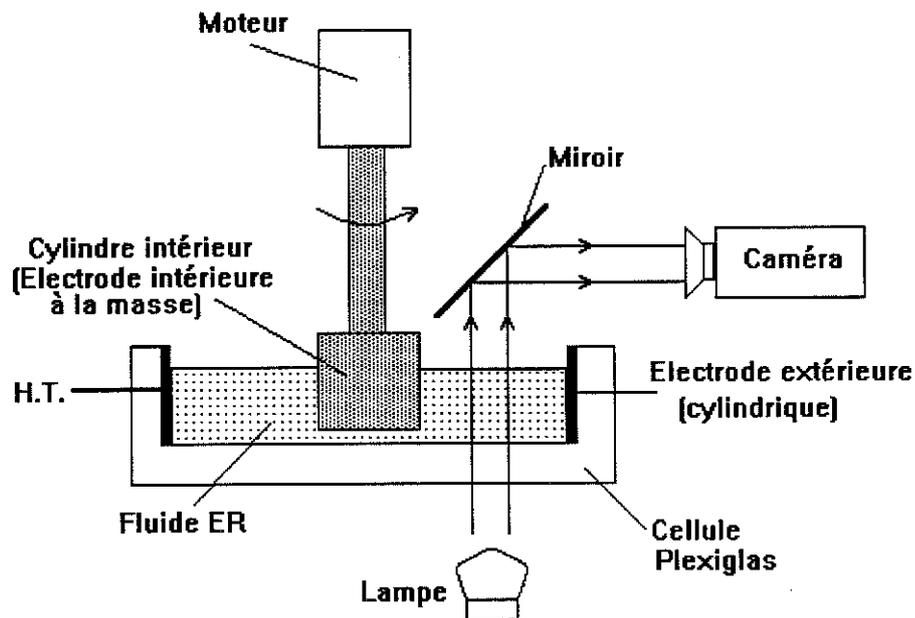
## B) DISPOSITIFS DE VISUALISATION

Le fait que les fluides ER soient des suspensions concentrées (fraction volumique de 15 à 30 %) ne permet pas une observation directe du comportement des particules et de leur structuration. Une solution consiste à utiliser une suspension ayant une faible fraction volumique ( $\phi < \text{qq. } \%$ ), mais une autre difficulté persiste due à la taille micrométrique des particules.

Nous avons réalisé deux dispositifs de visualisation qui nous permettent de faire des observations qualitatives sur la structuration du fluide ER. Le premier est basé sur le principe d'un rhéomètre et utilise des particules de taille millimétrique. Le second consiste en une cellule remplie avec un fluide ER de faible fraction volumique.

### Observation de particules de taille millimétrique :

Le schéma de principe est représenté à la figure B4. La distance entre le cylindre intérieur et le cylindre extérieur est de l'ordre de 2 cm, la hauteur de l'électrode extérieure est de 2,5 cm.



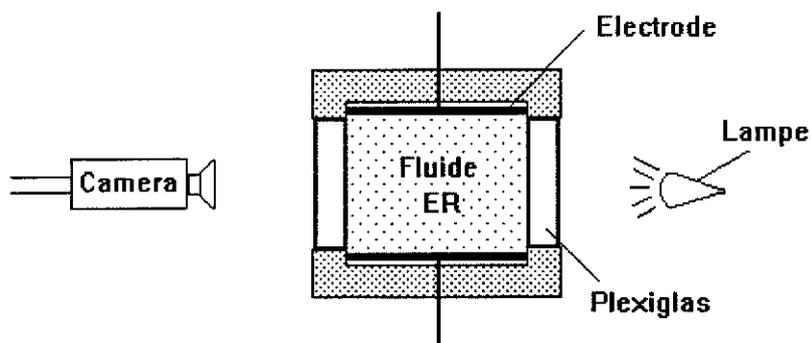
**Figure B4** : Dispositif de visualisation de particules millimétriques.

Le cylindre intérieur peut être entraîné par le moteur ou être tourné à la main. La haute tension est appliquée sur l'électrode extérieure et le cylindre intérieur est relié à la masse. La caméra connectée à un magnétoscope permet d'enregistrer la prise de vue.

Au-delà de son aspect pédagogique ce dispositif est utilisé pour discerner le comportement des particules, et notamment, pour voir l'influence de la valeur des conductivités des différents constituants. Il est cependant dépourvu d'instrument de mesure.

**Observation de suspensions diluées :**

Ce dispositif, représenté à la figure B5, permet d'étudier le comportement des particules dans un fluide ER de faible concentration volumique. En particulier on observe la formation des chaînes (ou pas) et leur stabilité.



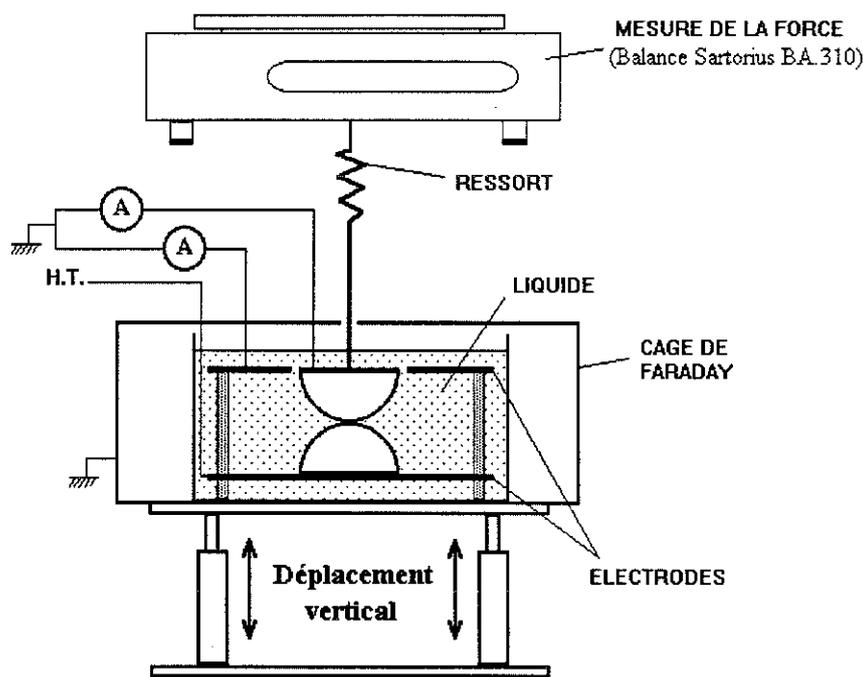
**Figure B5 :** Dispositif de visualisation des suspensions diluées.

## C) SYSTEME DE MESURE DE LA FORCE D'ATTRACTION ENTRE DEMI-SPHERES

La structuration des particules dans un fluide ER est due à l'existence d'une force d'attraction entre les particules lorsqu'elles sont soumises à un champ électrique. Pour étudier cette force d'interaction nous avons réalisé un dispositif dans lequel les particules sont remplacées par des demi-sphères de taille centimétrique permettant aisément :

- l'application d'un champ électrique (continu ou alternatif),
- la mesure de la force d'attraction entre demi-sphères,
- la visualisation et la mesure du courant traversant les demi-sphères.

La figure B6 donne une vue d'ensemble du dispositif. L'étude de l'interaction particule-électrode est réalisée en enlevant la demi-sphère inférieure (géométrie sphère-plan).



**Figure B6** : Dispositif de mesure de la force d'attraction entre demi-sphères.

### Procédure expérimentale :

Après une phase d'initialisation (mise en contact des demi-sphères avec une force d'appui nulle, en l'absence de champ électrique), on applique la tension désirée puis on exerce une force extérieure croissante, s'opposant à la force d'attraction, jusqu'à la séparation des demi-

sphères. Cette force, créée par l'allongement d'un ressort résultant du déplacement vers le bas de la cellule de mesure est directement lue sur la balance. La valeur maximale détectée correspond à la force d'attraction entre les demi-sphères. Le maintien en contact des deux sphères étant potentiellement instable (lorsque les sphères s'écartent légèrement, la force d'interaction diminue et le déséquilibre des forces s'amplifie) il est nécessaire de descendre la cellule lentement et avec le moins de vibrations possible.

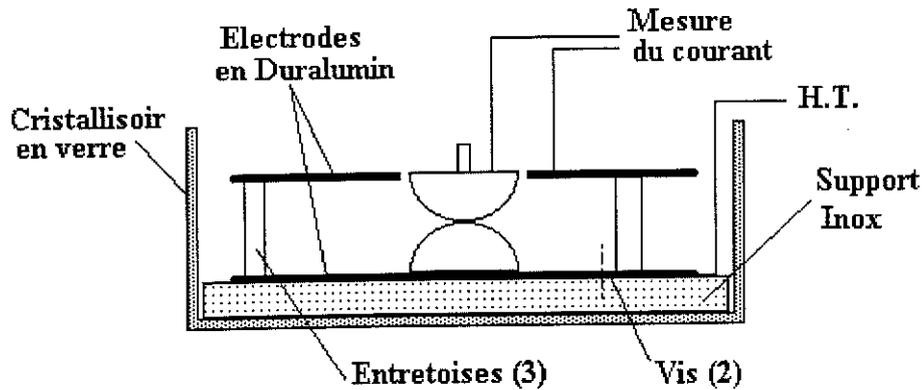
### **Appareillage :**

- balance électronique (Sartorius BA 310 S), gamme 1mg-310g, sensibilité 1 mg; cette balance effectuant une mesure de force sans déplacement il a été nécessaire d'introduire un ressort entre la demi-sphère supérieure et le point d'ancrage sur la balance.
- ressort : réalisé à partir de feuilles métalliques il offre une raideur faible pour les petits allongements et une raideur élevée pour les allongements importants (adaptation à la sensibilité et à la dynamique de mesure de la balance).
- table micrométrique de translation (matériels et accessoires Micro-contrôle), résolution de déplacement 10  $\mu\text{m}$ . Le déplacement vertical peut être motorisé ou manuel, le déplacement dans le plan horizontal (pour le centrage de la demi-sphère supérieure et de la cellule de mesure) est manuel.
- source continue : Spellman 20 PN 60 (0 - 20 kV; 3 mA)
- source alternative : générateur de fonctions Philips PM 5135  
amplificateur H.T. Trek (609-3) 60 dB -  $V_{\text{max}} \pm 10 \text{ kV}$ ,  $I_{\text{max}} \pm 5 \text{ mA}$
- mesure du courant : notre dispositif permet de mesurer et de visualiser à l'oscilloscope le courant traversant les demi-sphères (exploitation de l'allure du courant en champ alternatif, détection de présence éventuelle de micro-claquages). Un appareil autonome (fonctionnement sur pile) possédant une large étendue de mesure (du pA au mA) a été spécialement conçu au laboratoire. La mesure du courant dans le liquide, avec le même type d'appareil, nous permet d'évaluer sa conductivité in situ; une mesure plus précise peut être réalisée à l'aide d'un résistivimètre.

### **Description de la cellule :**

La cellule de mesure (Fig. B7) est composée de deux électrodes planes circulaires. Elles sont en Duralumin et ont un diamètre de 90 mm. L'électrode supérieure est percée en son centre d'un trou de diamètre 16 mm permettant le passage de la demi-sphère supérieure. Ces électrodes sont espacées d'une distance de 14 mm par trois entretoises en Téflon. L'électrode inférieure est vissée sur un socle en inox (au début des expériences il était en Téflon) qui évite

aux électrodes de se soulever lorsque la cellule est descendue. L'ensemble est placé dans un cristalliseur en verre.

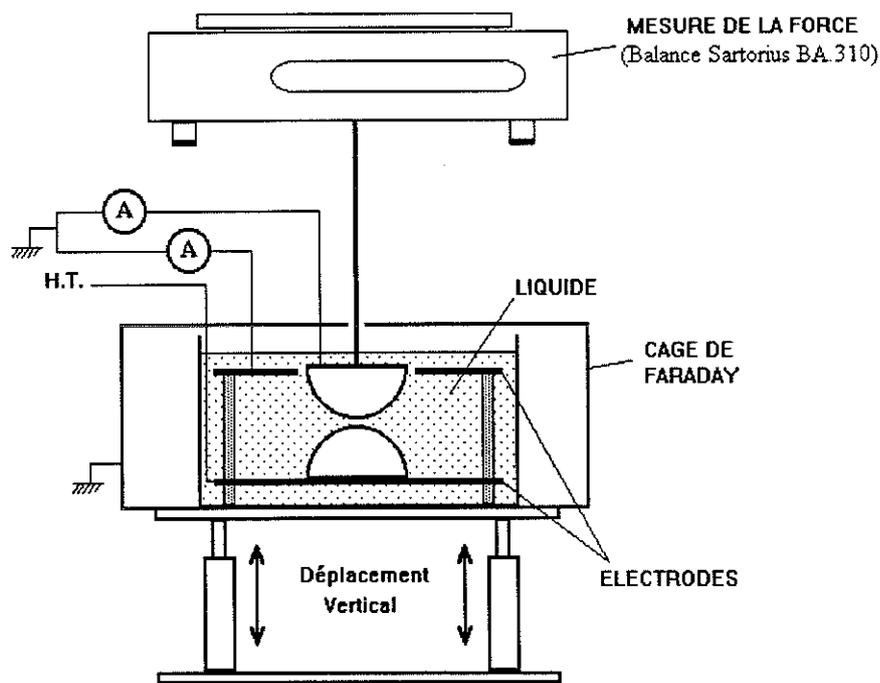


**Figure B7** : Schéma de la cellule de mesure.

La haute tension est amenée sur l'électrode inférieure et l'électrode supérieure est reliée à la masse. La demi-sphère inférieure est fixée au centre de l'électrode.

**Modification du dispositif pour les mesures en fonction de la distance :**

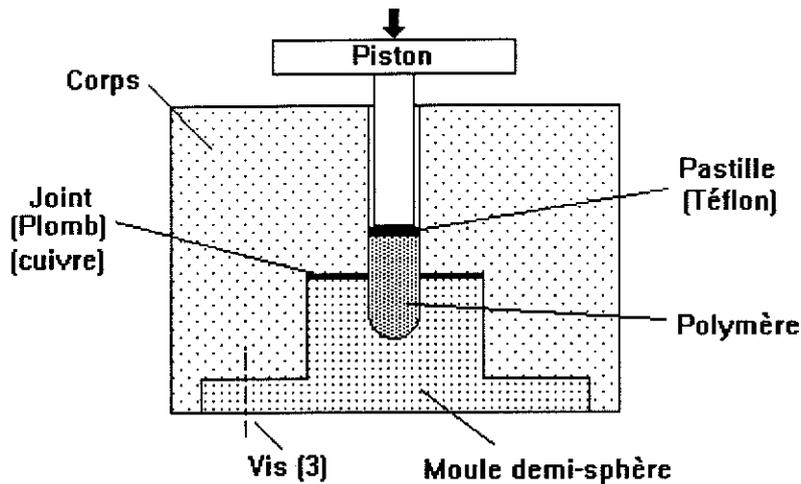
Pour la mesure de la force d'attraction entre demi-sphères légèrement écartées (effet de la distance) la demi-sphère supérieure est directement reliée à la balance par une tige rigide (Fig. B8) de dimension :  $L = 18 \text{ cm}$ ,  $\Phi = 2 \text{ mm}$ .



**Figure B8** : Dispositif de mesure de la force d'attraction en fonction de la distance.

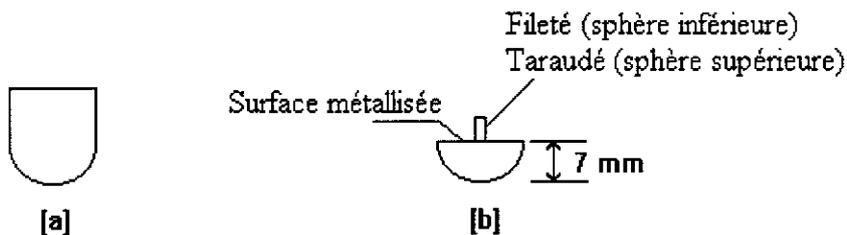
### Réalisation des demi-sphères :

La zone de contact entre les deux demi-sphères est la partie la plus importante. L'obtention de sphères ayant un bon état de surface est très difficile à réaliser par usinage. Nous avons donc fabriqué un moule de forme adaptée qui nous permet de disposer de demi-sphères ayant une bonne finition (Fig. B9). Cependant les matériaux que nous pouvons utiliser sont uniquement des polymères thermoplastiques.



**Figure B9** : Moule permettant de réaliser les demi-sphères.

Les pièces de moulage ainsi obtenues (Fig. B10.a) sont alors usinées puis fixées soit sur l'électrode supérieure soit sur l'électrode inférieure (Fig. B10.b). Le plan diamétral des demi-sphères est métallisé à l'aide d'une colle chargée à l'argent et un fil de cuivre de quelques dixièmes de millimètre est fixé sur la demi-sphère supérieure.



**Figure B10** : Préparation des demi-sphères.

## D) MESURE DE LA CONDUCTIVITE ELECTRIQUE DES POUDRES ET DES LIQUIDES

Dans notre étude il est nécessaire de connaître la conductivité des matériaux employés, à savoir : les liquides, les poudres et les polymères servant à fabriquer les demi-sphères

### **Les liquides :**

Bien qu'ayant des conductivités très faibles ( $\sigma \sim 10^{-13}$  S/m), la mesure de la conductivité des liquides est la plus aisée. Pour cela on utilise un appareil développé au laboratoire (résistivimètre à faible champ alternatif), la cellule de mesure du résistivimètre est remplie de liquide puis connectée au boîtier qui affiche les valeurs de sa capacité et de sa conductance, on peut alors facilement calculer la permittivité et la conductivité du liquide.

Dans le cas des expériences avec les demi-sphères, la mesure du courant circulant entre les deux électrodes permet également de déduire la conductivité du liquide. Les résultats obtenus étant peu différents de ceux fournis par le résistivimètre, nous retenons les valeurs de conductivités données par la seconde méthode.

### **Les poudres :**

Un moule à pastiller rempli de poudre et pressé à 8 tonnes fournit un échantillon de poudre compactée (pastille de diamètre 13 mm et d'épaisseur  $\sim 1$  mm). Deux feuilles métalliques minces servent d'électrodes et sont appliquées sur les faces de la pastille. Le relevé de la caractéristique courant-tension permet de déterminer la valeur de la conductivité de la poudre.

### **Les matériaux constituant les demi-sphères :**

La pièce obtenue après moulage a l'aspect représenté sur la figure B10.a. On peut supprimer l'extrémité sphérique et ainsi obtenir un cylindre et, une fois les deux faces métallisées, mesurer la conductivité du polymère.



Study of electrorheological suspensions : Role of the conduction  
of solid and liquid phases in the interaction between particles.

**Abstract**

This work concerns the study of the interaction between particles of electrorheological fluid (ER) under a DC field. These fluids are suspensions of micronic particles (1 - 100  $\mu\text{m}$ ) dispersed in a dielectric liquid. Under an electric field (a few kV/mm) their rheological properties are modified (yield stress and increase of the apparent viscosity when the fluid flows). We point out that a necessary condition to obtain an ER effect is that the particles be more conducting than the liquid phase. In this case the interaction is determined by the strength of the electric field and by the ratio of the conductivities solid/liquid. We also point out that there is a maximum value for the solid conductivity above which the ER effect is impossible. An analytical model of the interaction is developed. It takes into account the strength of the electric field, the ratio of conductivities, the permittivity of the liquid and others parameters. This model is verified with a large scale experiment consisting in two half spheres ( $R = 0.7 \text{ cm}$ ). Different aspects of the conduction of the liquid under high electric field are considered, the enhancement of the dissociation of ionic species under the influence of the electric field (Onsager effect) and the saturation of the current between the particles. Using the expression of the interaction between spheres as a function of the distance between them, we estimate the static yield stress of ER fluids. All our results are compared with measurements on real ER fluids. The behaviour of the static yield stress obtained for different liquids is similar to the one obtain for the force of interaction between the two half-spheres. We also approach the questions of the interaction between particles and electrodes, the influence of the frequency of the electric field and the case of multilayer materials.

The work shows that it is necessary to study the phenomena of charge transfer at the solid/liquid interfaces and of conduction under high electric field as well as the phenomena of breakdown in dielectric liquids in order to optimise the interaction between particles in ER fluids.

**Key words :**

- Electrorheology
- Rheology
- Suspension
- High electric field
- Conduction of dielectric liquids
- Electrostatic interaction

