



HAL
open science

Fragmentation d'une suspension de particules solides

Joris Château

► **To cite this version:**

Joris Château. Fragmentation d'une suspension de particules solides. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Aix Marseille, 2018. Français. NNT: . tel-02319770

HAL Id: tel-02319770

<https://hal.science/tel-02319770>

Submitted on 18 Oct 2019

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

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

THÈSE

en vue de l'obtention du grade de

Docteur de l'Université d'Aix-Marseille

École Doctorale 353

Science pour l'ingénieur : Mécanique, Physique, Micro et Nanoélectronique

Soutenue le 27 septembre 2018

par **Joris Château**

Fragmentation d'une suspension de particules solides

Directeurs de Thèse : Mme. Élisabeth GUAZZELLI et M. Henri LHUISSIER

Devant la commission d'examen formée de :

Mme.	Anke LINDNER	Rapportrice
M.	Hamid KELLAY	Rapporteur
Mme.	Élisabeth LEMAIRE	Examinatrice
M.	Christophe CLANET	Examinateur
M.	Matthieu ROCHÉ	Examinateur
Mme.	Élisabeth GUAZZELLI	Directrice
M	Henri LHUISSIER	Directeur

Laboratoire IUSTI
École Polytechnique Universitaire de
Marseille
5, Rue Enrico Fermi, Technopôle de
Château-Gombert
13453 Marseille

École Doctorale Sciences pour
l'ingénieur : Mécanique, Physique,
Micro et Nanoélectronique
5, Rue Enrico Fermi, Technopôle de
Château-Gombert
13453 Marseille

REMERCIEMENTS

Une année sépare le jour de ma soutenance et la rédaction de ces remerciements. Beaucoup de journées ont passé et pourtant, le souvenir des trois années passées à Marseille est encore vivace. Car j'ai conscience, dans mon nouveau laboratoire, de l'influence qu'a d'abord eue Henri. Je resterai toujours marqué par la rigueur dans laquelle infusent chacune de tes entreprises scientifiques et par la qualité du soutien dont tu as fait preuve à mon égard. En qualité de premier thésard, je me dois, pour les générations futures, d'évoquer ton penchant pour la communication assistée par tableau noir que je regrette de ne pas avoir documentée, par exemple sous la forme d'un reportage photographique au long cours, que j'aurais intitulé *Sans ma craie, me voilà amputé*.

Merci Babette, pour tes entrées fracassantes au labo à grand renfort de « *The **** is back* », mais avant tout pour tes conseils et pour le travail effectué lors de la rédaction du gros JFM.

Merci également aux membres du jury pour avoir lu et évalué mon travail, ainsi que pour les nombreuses questions que vous avez soulevées.

Au-delà d'une direction idéale, c'est l'entourage des thésards et des post-doc qui aura sublimé ces trois années. Merci donc à Saif, Mathieu, Antoine, Cécile et Franco, membres de la première équipée. Merci aussi à Loren et à Sergio, qui peuvent passer quand ils veulent dans la boîte rose (je prends des libertés, mais après tout, j'ai participé à sa construction!), Hugo et Régis, les derniers à avoir rejoint les effectifs.

Merci à toute l'équipe des coureurs, grâce auxquels aucun des chemins de l'étoile ne m'est inconnu.

Merci à tous les permanents de l'équipe GEP, tous très impliqués dans le travail des thésards, cette équipe est un havre de collaboration scientifique.

Merci aux mécanos de l'atelier, Sadi, Paul et Frédéric.

Pour finir, merci à mes parents, Chantal et Pierre ainsi qu'à ma sœur Ludivine, pour le soutien indéfectible apporté dans chacun de mes choix.

Et pour vraiment finir, merci Émilie, pour les visites inopinées au cours de la rédaction et pour tout le reste.

Table des matières

Introduction	1
1 État de l'art	5
1.1 Jets de liquides monophasiques	6
1.1.1 Instabilité capillaire	6
1.1.2 Longueur d'un jet	8
1.1.3 Derniers instants d'un pincement	11
1.1.4 Fluides non-newtoniens	13
1.1.5 Bruit et déformation	14
1.2 Rhéologie des suspensions particulières	15
1.2.1 Suspension de particules sphériques	15
1.2.2 Suspensions de fibres	18
1.2.3 Écoulements élongationnels	20
1.2.4 Migration	21
1.2.5 Granularité	22
1.3 Les jets de suspension	23
1.3.1 Historique de l'étude du sujet	23
1.3.2 Approche effective/non-effective	23
1.3.3 Tension de surface et rôle du mouillage	26
1.3.4 Questions ouvertes	28
2 Pincement d'un pont capillaire	29
2.1 Méthodes expérimentales	30
2.2 Résumé des résultats	33
2.3 Article publié dans le <i>Journal of Fluid Mechanics</i>	40
3 Jet gravitaire	63
3.1 Dispositif et méthodes expérimentales	65
3.2 Étirement et rhéologie élongationnelle	74
3.2.1 Cas newtonien	74
3.2.2 Cas des suspensions	78
3.3 Longueur du jet	80
3.3.1 Observations et mesures	80
3.3.2 Dynamique de pincement	82
3.3.3 Modélisation de la longueur d'un jet	84
3.4 Article soumis	89

TABLE DES MATIÈRES

3.5	Volume des gouttes et refragmentation	95
3.6	Forme des gouttes et mode du pincement	99
4	Pont et jet de suspensions fibrées	105
4.1	Fibres et liquides utilisés	107
4.2	Pincement d'un pont capillaire	107
4.2.1	Observations et comparaison au cas newtonien	107
4.2.2	Temps de pincement	109
4.3	Rhéologie élongationnelle	114
4.3.1	Mesures	114
4.3.2	Comparaison à la rhéologie de cisaillement	117
4.4	Comparaison aux théories et mesures existantes	120
4.4.1	Prédictions théoriques	120
4.4.2	Mesures de la littérature et exploration du régime dilué	121
4.5	Retour sur le pont capillaire	122
4.6	Longueur du jet	124
	Conclusion	127
	Bibliographie	129

De nombreux phénomènes naturels et procédés industriels impliquent la fragmentation d'un fluide, c'est-à-dire la séparation d'un volume fluide initialement connexe en gouttes disjointes. Bien souvent, ce fluide est lui-même un milieu divisé présentant une rhéologie complexe et une certaine granularité fixée par l'échelle à laquelle la phase discontinue est dispersée au sein de la phase continue ; qu'il s'agisse d'une suspension de particules solides, liquides (émulsion) ou gazeuses (mousse). Quelques exemples sont illustrés sur la figure 1, auxquels on peut ajouter les procédés visant à granuler, calibrer, sécher, enduire ou simplement réduire les dimensions et favoriser les échanges interfaciaux.

Décrire ou maîtriser tous ces phénomènes demande de comprendre, pour un milieu divisé, la physique de chacune des étapes de déformation et de changement topologique menant au détachement des gouttes. Nous nous proposons ici de progresser sur cette voie. En pratique, quelle que soit la complexité des processus – pouvant, par exemple, impliquer la formation transitoire de nappes ou des effets aérodynamiques – la fragmentation opère in fine sur des jets ou filaments fluides étirés. De plus, si les situations d'intérêt impliquent une large variété d'interactions entre particules (Browniennes, électrostatiques...), elles ont toutes en commun la contrainte stérique de non-pénétration des particules. Nous choisissons donc d'aborder le problème en considérant la fragmentation d'un jet capillaire d'une suspension de particules solides interagissant uniquement mécaniquement, par contact ou via le liquide newtonien dans lequel elles sont suspendues.

Nous adoptons une démarche basée sur des expériences simples de pincement d'un pont capillaire instable et de fragmentation d'un jet étiré par gravité nous permettant de contrôler l'ensemble des paramètres physiques. Nous nous fixons pour objectif de comprendre l'échelle de temps τ du pincement d'un jet et les échelles de longueurs sélectionnées par la fragmentation, à savoir, la longueur L du jet à la brisure et la taille des fragments, principalement caractérisée par leur volume Ω et leur longueur Λ , en fonction des paramètres de l'écoulement et de la suspension. Pour un jet de liquide newtonien dans une atmosphère négligeable, ces échelles dépendent du diamètre h_0 et de la vitesse d'extrusion u_0 du jet, de son étirement, contrôlé ici par la gravité g , des propriétés de volume du liquide (masse volumique ρ et viscosité η) et des effets capillaires, conséquences de sa tension de surface σ et, in fine, moteurs de la fragmentation, au travers de trois nombres sans dimensions, $Oh = \eta/\sqrt{\rho\sigma h_0}$, $Bo = \rho g h_0^2/\sigma$ et $We = \rho h_0 u_0^2/\sigma$.

Pour une suspension, on peut donc s'attendre à ce que la fragmentation soit tout d'abord affectée par la rhéologie découlant de la présence des particules et dépendant au premier ordre de la fraction volumique solide ϕ . Cette rhéologie est bien comprise pour des écoulements simples de particules sphériques très petites devant la taille de l'écoulement. Elle demeure néanmoins un sujet de recherche à part entière, notamment pour des particules non sphériques comme des fibres, introduisant un rapport d'aspect l/d et une orientation des particules, les types de déformations plus complexes tels que les écoulements élongationnels rencontrés dans les jets, et lorsque la taille d des particules devient comparable à la dimension de l'écoulement, ce qui intervient nécessairement lors de la brisure d'un jet, puisque son diamètre doit localement s'annuler. On peut aussi s'attendre à des effets dus à la présence de particules à l'interface du jet et aux déformations locales qu'elles induisent selon l'angle de mouillage θ formé par le liquide suspendant sur les

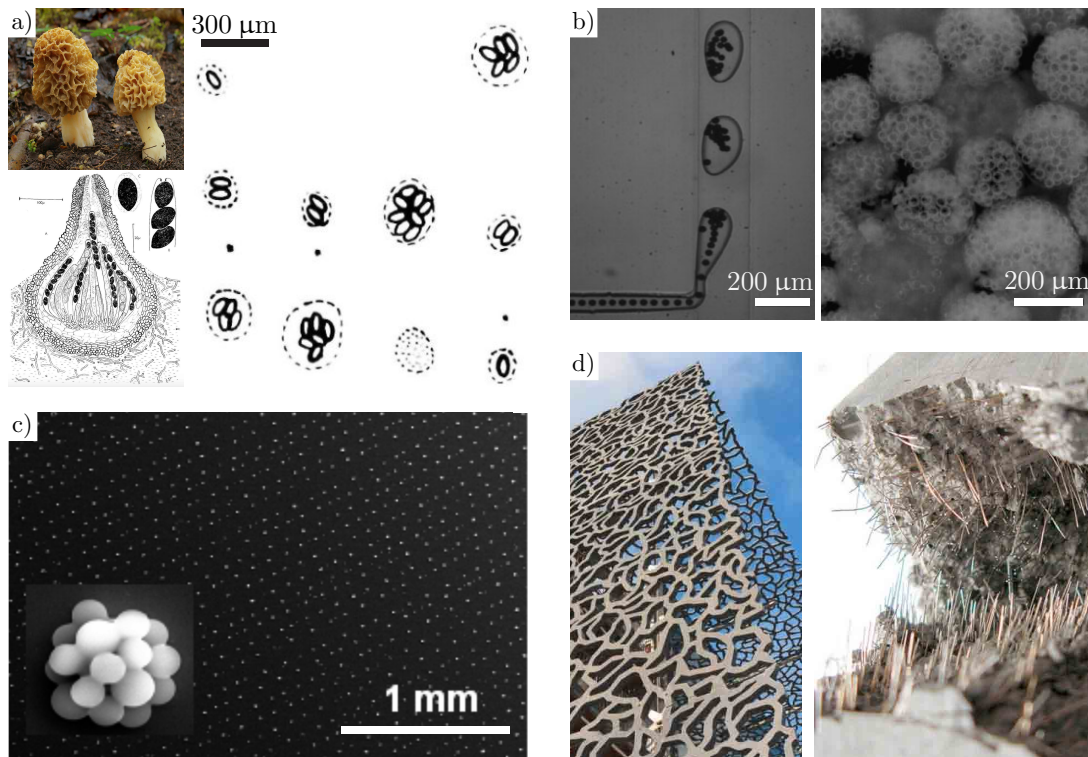


FIGURE 1 – Quelques exemple de fragmentation ou mise en forme de fluides contenant des particules. a) La distance à laquelle les champignons ascomycètes disséminent leurs spores dépend de la fragmentation du jet formé par l'éjection du liquide visqueux dans lequel elles sont suspendues (adapté de [43] et Wikipédia). b) Un procédé d'encapsulation microfluidique fragmente un jet d'émulsion en agrégats de gouttelettes (adapté de [92]). c) Des dépôts périodiques de colloïdes, utilisés pour leurs propriétés photoniques, sont obtenus par fragmentation et séchage d'un jet étiré par un champ électrique (reproduit de [48]). d) La fine résille du MuCEM nécessite la coulée d'un béton à des échelles (~ 10 cm) proches de celles des fibres (~ 1 cm) et granulats qui le renforcent.

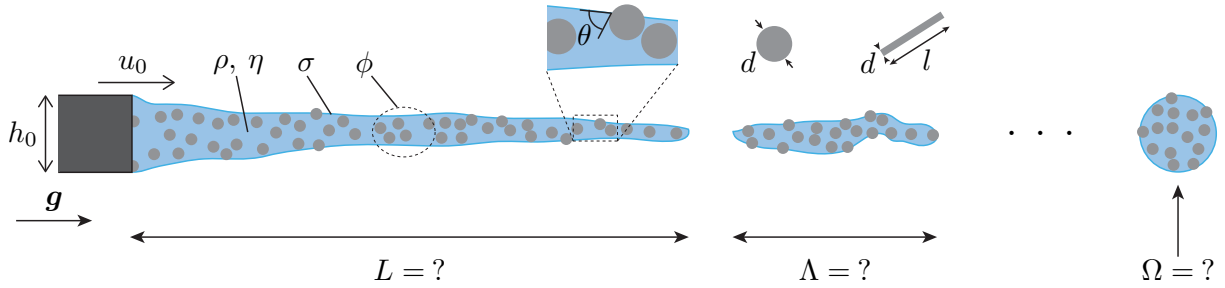


FIGURE 2 – Les paramètres et questions de la fragmentation d'un jet de suspension.

particules. Formellement, nous cherchons donc la relation \mathcal{F} suivante :

$$\tau, L, \Lambda, \Omega = \mathcal{F}(Oh, We, Bo, \phi, d/h_0, \theta, l/d),$$

où les paramètres en violet sont spécifiques aux suspensions.

L'espace des paramètres est vaste et la gamme des échelles impliquées depuis le contact et le mouillage ($\lesssim 1 \mu\text{m}$) jusqu'aux longueurs de jet ($\sim 1 \text{m}$) rend délicate toute approche numérique. Ce constat suggère une approche heuristique, initiée récemment aux États-Unis, en France et en Angleterre par quelques groupes qui se sont concentrés sur un pincement isolé d'une suspension de billes. Ils ont identifié des comportements de liquide newtonien aux premiers instants de la fragmentation puis des déviations à la dynamique newtonienne lorsque le diamètre du jet s'est réduit à une échelle comparable à l'échelle granulaire. Cependant, des questions fondamentales demeurent concernant le mécanisme de déviation par rapport au régime newtonien effectif, sa dépendance aux paramètres de la suspension et même son existence pour des particules non-sphériques. Concernant la fragmentation à proprement parler, c'est-à-dire la compréhension des lieux des brisures multiples réduisant le jet en gouttes ou fragments, tout reste à faire. À notre connaissance, les échelles de longueurs L , Ω et Λ n'ont pas été documentées ni expliquées.

Pour répondre à ces questions, nous étudions au chapitre 2 la dynamique d'un pincement isolé sur un pont capillaire instable afin de préciser l'échelle de temps τ et les conséquences des effets de taille finie. Armé de cette compréhension, nous abordons au chapitre suivant le problème plus global de la fragmentation d'un jet tout entier, ce qui nous permet de nous affranchir des effets capillaires pour mesurer la rhéologie élongationnelle et, bien sûr, d'adresser la question des longueurs L , Ω et Λ . Enfin nous étudions dans un dernier chapitre l'influence de la géométrie et de l'orientation des particules en considérant des suspensions de fibres. Ces trois chapitres sont précédés d'un bref état de l'art.

CHAPITRE 1

ÉTAT DE L'ART

Ce chapitre présente un état de l'art de la fragmentation des jets de suspension. Il s'agit d'un écoulement à interface libre d'un milieu hétérogène. C'est un sujet complexe qui emprunte bien sûr à la dynamique d'un jet capillaire liquide et à la rhéologie des suspensions de particules, mais qui fait aussi émerger de nouveaux comportements provenant du couplage entre ces deux facettes du problème.

Avant d'aborder les jets de suspension, nous introduirons dans les deux premières parties les notions générales et quelques résultats concernant, d'une part, la fragmentation de jets de liquides homogènes, ou monophasiques (§1.1), et, d'autre part, la rhéologie des suspensions particulières (§1.2). Ce sont deux sujets de recherche relativement anciens dont certains aspects sont désormais classiques et bien compris. Le lecteur averti pourra donc survoler certains passages. Nous verrons néanmoins que des questions demeurent et que ce sont des sujets de recherche actuels.

Nous présenterons ensuite, dans la partie 1.3, les connaissances sur les écoulements capillaires de suspensions. Ce champ d'étude est plus récent. Il n'a fait l'objet que d'un petit nombre d'études et est encore largement ouvert. Nous serons donc plus exhaustifs. Nous présenterons l'historique des développements récents et soulignerons les résultats établis ainsi que les questions ouvertes.

1.1 Jets de liquides monophasiques

Nous considérons ici les jets de liquides monophasiques, homogènes jusqu'à une échelle moléculaire, tels que le jet d'eau formé en ouvrant un robinet. Ce sont des objets liquides élançés qui sont délimités par une interface libre avec le milieu ambiant, par exemple l'air, dans lequel ils s'écoulent et se déforment. Les effets capillaires associés à cette interface affectent leur dynamique au premier ordre. Elle assure la cohésion des jets, mais aussi, paradoxalement, participe à leur fragmentation en gouttes en réduisant continûment la section du jet jusqu'à l'échelle moléculaire.

Nous passerons en revue les mécanismes de fragmentation (depuis la déstabilisation initiale jusqu'au pincement), l'influence de la rhéologie et des sollicitations extérieures, ainsi que les conditions de formation d'un jet. Nous discuterons aussi le cas de liquides non-newtoniens et le rôle du désordre.

1.1.1 Instabilité capillaire

Un jet capillaire élançé se déstabilise spontanément, même en absence de sollicitations extérieures, pour finalement se réduire en gouttes. Le phénomène, illustré sur la figure 1.1, résulte d'un mécanisme d'instabilité linéaire due à la tension de surface et à la forme typiquement cylindrique d'un jet. En effet, en présence de tension de surface, c'est-à-dire d'une énergie libre de surface (s'exprimant en J/m^2 ou N/m), la géométrie cylindrique n'est pas une configuration d'énergie minimale. Comme l'a compris Plateau dès 1873 [76], toute modulation du diamètre du jet sur une échelle suffisamment grande engendre une diminution de l'aire interfaciale et donc une diminution de l'énergie du système. Pour un jet de diamètre uniforme h_0 , la longueur d'onde critique est $\lambda_c = \pi h_0$. C'est-à-dire que toute perturbation infinitésimale du diamètre dont la longueur d'onde est plus grande que le périmètre du jet est instable et croît avec le temps. Ce critère, seul, ne permet pas de prédire la longueur d'onde effectivement sélectionnée parmi les valeurs instables et, donc, les tailles des gouttes formées. Pour comprendre les tailles de gouttes il faut considérer la dynamique de déstabilisation et prendre en compte l'inertie et la rhéologie du liquide.

Pour un jet de liquide newtonien de masse volumique ρ et de viscosité η dans un milieu ambiant d'influence négligeable, deux temps typiques peuvent être formés à partir du diamètre h_0 et de la tension de surface σ du jet :

$$\tau_\rho = \sqrt{\frac{\rho h_0^3}{\sigma}}, \quad \tau_\eta = \frac{\eta h_0}{\sigma}. \quad (1.1)$$

Le premier est un temps typique de déstabilisation inertielle, observé lorsque la viscosité n'est pas limitante. Le second est le temps typique de déstabilisation d'un liquide très visqueux. La limite entre les deux dynamiques est typiquement obtenue lorsque les deux temps sont égaux, ce qui définit le nombre sans dimension de Ohnesorge

$$Oh = \frac{\eta}{\sqrt{\rho \sigma h_0}}, \quad (1.2)$$

qui peut être vu comme l'inverse de la racine d'un nombre de Reynolds basé sur la vitesse capillaire σ/η . C'est donc le critère naturel pour déterminer si la fragmentation d'un jet

s'effectue dans la limite inertielle ($Oh \ll 1$) ou visqueuse ($Oh \gg 1$).

Au-delà de ces lois d'échelle, le temps et la longueur d'onde sélectionnés peuvent être déterminés plus précisément, pour toutes propriétés du liquide, par une analyse linéaire de stabilité. Elle a été réalisée historiquement par Rayleigh [77, 78] sur la géométrie exacte d'un cylindre. Un résultat simplifié peut être obtenu en adoptant une modélisation dite de faible pente, valide pour les grandes longueurs d'onde [88]. Pour une perturbation infinitésimale du diamètre du jet de la forme $e^{i(kz-\omega t)}$, où k est le nombre d'onde et ω la pulsation, la relation de dispersion obtenue [88] est donnée par

$$\omega^2 \tau_\rho^2 = -\frac{1}{8}[(kh_0)^2 - \frac{1}{4}(kh_0)^4] - \frac{3}{4}i\omega\tau_\eta(kh_0)^2, \quad (1.3)$$

où le terme de gauche est inertiel et ceux de droite sont, dans l'ordre, capillaire et visqueux. Le taux de croissance est bien négatif pour $kh_0 > 1$ (i.e. pour $\lambda < \pi h_0$). Dans la limite inertielle ($Oh \ll 1$), il est maximal pour une longueur d'onde $\simeq \lambda_c/0.7 \simeq 4.5h_0$, qui est donc la longueur d'onde la plus instable qui se développe en pratique. En revanche, dans le cas visqueux, la longueur d'onde la plus instable dépend toujours de Oh et augmente comme $kh_0 \sim 1/\sqrt{Oh}$. Cependant les taux de croissance sont similaires pour une large gamme de longueurs d'ondes et l'instabilité devient en pratique peu sélective. Comme illustré sur la figure 1.2, ces résultats théoriques rendent bien compte des taux de croissance observés expérimentalement.

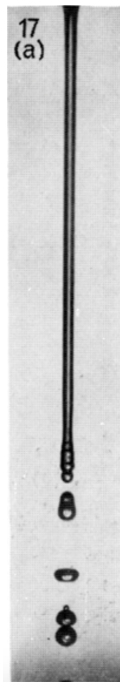


FIGURE 1.1 – Jet extrudé à la vitesse u_0 d'une buse de diamètre h_0 . Tiré de [87].

1.1.2 Longueur d'un jet

La description linéaire de l'instabilité, vue précédemment, ne s'applique que dans la limite où le diamètre du jet est petit devant l'échelle de taille longitudinale. Elle ne permet pas de décrire les détails ultimes du pincement, c'est-à-dire la manière dont une goutte se détache effectivement du jet (ces derniers instants seront décrits dans la section 1.1.3). Cependant elle capture bien le temps typique de l'ensemble de la fragmentation, car celui-ci est dominé par la phase initiale de modulation de la section du jet par l'instabilité. Le temps total du pincement est dominé par le temps de croissance de l'instabilité τ (que ce soit τ_η ou τ_ρ). Ainsi, une première estimation de la longueur à la brisure d'un jet extrudé d'une buse à la vitesse u_0 peut être donnée par $u_0\tau$, en considérant la vitesse uniforme le long du jet.

Du jet étiré...

Dans la plupart des situations pratiques, les jets ne sont pas uniformes, comme considéré jusqu'ici, mais étirés, par exemple par la gravité ou par entrainement visqueux. Estimer la longueur d'un jet par $u_0\tau$ n'est alors plus valable.

En effet, pour un jet stationnaire étiré par la gravité g , tel qu'illustré sur la figure 1.3, la vitesse d'une tranche de fluide est $u \sim \sqrt{gz}$ à grande distance z de la buse. La conservation du débit $uh = u_0h_0^2$, où h_0 est le diamètre de la buse, prescrit que le diamètre du jet s'amincit comme $\propto 1/z^{1/4}$. L'étirement du jet introduit donc une nouvelle échelle de temps $\dot{\epsilon}$, liée au taux d'étirement $\dot{\epsilon}^{-1} \sim (\partial_z u)^{-1} \sim \sqrt{z/g}$. Il ralentit la déstabilisation du jet en étirant continûment la longueur d'onde des modulations de diamètre existantes vers la limite de la relation de dispersion ($kh \ll 1$) où les taux de croissance s'effondrent.

Afin de déterminer comment la longueur du jet s'en trouve modifiée, prenons le cas d'un jet dont le pincement est limité par la viscosité ($Oh \gg 1$). À la distance L , la section du jet est $h(L) \sim (u_0h_0^2)^{1/2}/(gL)^{1/4}$. Or, pour un jet de diamètre $h(L)$, le taux de croissance d'une instabilité est $\tau_\eta^{-1} \sim \sigma/\eta h(L)$. Dans le cas d'un jet étiré, la longueur L est alors obtenue en comparant le taux de croissance de l'instabilité τ_η^{-1} au taux d'étirement

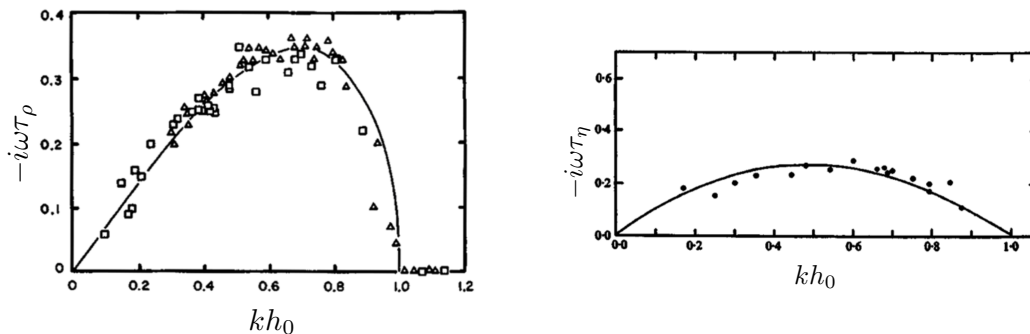


FIGURE 1.2 – Gauche : Taux de croissance adimensionné en fonction du nombre d'onde adimensionné dans le cas d'une perturbation sinusoïdale sur un cylindre liquide dans le cas $Oh \ll 1$. Droite : cas $Oh = 0.58$. Extraits de [51] et [40]

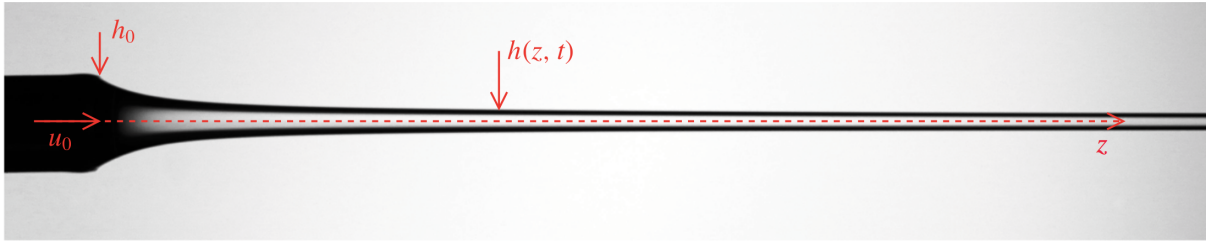


FIGURE 1.3 – Liquide extrudé d’une buse, dans l’air, et formant un jet étiré sous l’effet de la gravité. Tiré de [52].

é à la distance L . Cet argument, employé dans [44], permet d’estimer la longueur intacte d’un jet étiré par

$$L \sim \left(\frac{g u_0^2 h_0^4 \eta^4}{\sigma^4} \right)^{1/3}. \quad (1.4)$$

Que le jet soit visqueux ou non, l’argument visant à comparer seulement les temps locaux (τ et ϵ^{-1}) fournit un ordre de grandeur de L . Pour appréhender toute la complexité de la fragmentation d’un jet il est nécessaire de prendre en compte l’historique de la croissance de modes (éventuellement globaux) tout au long du jet [44, 52].

Remarquons enfin que la fragmentation par pincement capillaire n’est pas le seul mécanisme de fragmentation d’un jet. On citera l’instabilité de cisaillement de Kelvin-Helmholtz se développant à l’interface d’un jet extrudé à grande vitesse dans un milieu dont la masse volumique est élevée. Le jet prend alors une forme très irrégulière et se fragmente en de nombreuses gouttes qui peuvent être beaucoup plus petites que le diamètre du jet [57].

Un autre type de déformation concerne les jets comportant des charges électriques qui peuvent, en étant soumises à une différence de potentiel, donner naissance à des instabilités en surface du jet [67]. Ce sont cependant deux régimes que nous n’avons pas abordé et que nous ne discuterons pas dans cette thèse.

...au goutte-à-goutte

La formation d’un jet n’est pas vérifiée, en pratique, pour n’importe quelle vitesse initiale à la buse. Pour une vitesse d’extrusion u_0 suffisamment faible, la fragmentation se déroule directement à la buse, ce qui définit le régime « goutte-à-goutte ». En absence de gravité et d’effets visqueux, on peut alors s’attendre à ce que l’inertie du fluide soit primordiale pour la sélection du régime. Elle est à mettre en compétition avec la capillarité qui elle, pince le jet et rétracte son extrémité une fois qu’il est pincé. En considérant le temps de croissance τ_ρ et la vitesse u_0 , le régime goutte-à-goutte est atteint lorsque la distance verticale parcourue par le jet $u_0 \tau_\rho$ est du même ordre ou inférieure à h_0 . Ceci peut aussi s’écrire comme un nombre sans dimension appelé nombre de Weber, et dont l’expression est

$$We = \frac{\rho h_0 u_0^2}{\sigma} \quad (1.5)$$

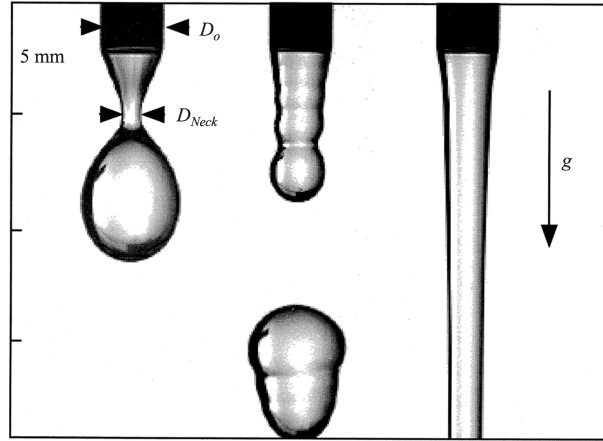


FIGURE 1.4 – Série de clichés illustrant la transition du goutte-à-goutte à l'établissement d'un jet. Tiré de [19]

D'après cette définition, un jet est formé pour $We \gg 1$. En goutte-à-goutte, les effets capillaires sont suffisamment importants pour qu'après chaque goutte détachée, le liquide soit recollecté à la buse. Ce critère est bien sûr modifié par la gravité et la viscosité qui tendent toutes deux (pour un jet descendant) à faciliter l'entraînement du liquide et donc la formation du jet. Clanet et Lasheras [19] dans le cas $Oh \ll 1$ ainsi que Sauter et Bugish [80] dans le cas $Oh \gg 1$ proposent respectivement, à partir d'un modèle et d'une corrélation, que le Weber critique s'écrit :

$$We_c \propto (BoOh)^{-3/5}, \quad We_c \propto Bo^{-0.2} Oh^{-0.4}, \quad (1.6)$$

avec $Bo = \rho g h_0^2 / \sigma$, le nombre de Bond, qui mettent en balance les effets gravitaires avec les effets de tension de surface.

Faisons deux remarques à propos de cette transition. Premièrement, le liquide passe du régime goutte-à-goutte au régime de jet en passant par un régime transitoire (sur une faible plage de vitesses débitantes) de goutte-à-goutte chaotique [69] associé à une dispersion plus importante des tailles de gouttes créées [59]. Régime, qui, pour un fluide très visqueux est en pratique très délicat à observer du fait des très longs filaments liquides créés entre la buse et la goutte pour des faibles vitesses débitantes. La seconde remarque concerne le fait que les transitions goutte-à-goutte/jet et jet/goutte-à-goutte ne sont pas équivalentes, autrement dit, il existe un hystérésis sur le nombre de Weber critique selon que l'on réalise la transition depuis des débits faibles ou élevés [19].

Contraction à la buse

Le rôle joué par la buse a jusqu'à présent été totalement occulté, elle constitue pourtant l'origine à partir de laquelle l'écoulement, initialement confiné par des parois rigides, est introduit dans un milieu extérieur sans parois pour former un jet.

Dans la buse, les parois solides imposent une condition de non-glissement. La vitesse est nulle à la paroi et maximale au centre de la buse. A contrario, loin de la buse, l'absence de parois entraîne une relaxation vers un profil de vitesse uniforme sur l'intégralité d'une

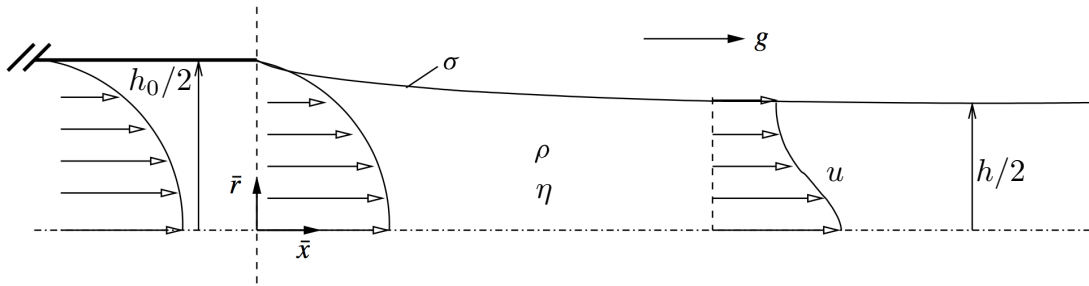


FIGURE 1.5 – Schéma d'un jet contracté en sortie de buse. Le profil de vitesse parabolique initial évolue vers un profil de vitesse uniforme sur la section du jet. Tiré de [84]

tranche de fluide. Il peut être important d'estimer cette relaxation pour un écoulement à la buse de type Poiseuille établi, le profil de vitesse suit $u(r) \simeq u_0(1 - 4r^2/h_0^2)$, où r est la distance à l'axe de la buse. En l'absence de gravité et si aucun transfert n'est réalisé entre les différentes sections du jet, les conservations du débit $\int_0^h \rho u^2 r dr$ et de quantité de mouvement $\int_0^h \rho u r dr$ imposent $u = 4u_0/3$ et $h = \sqrt{3}h_0/2$ au loin. C'est à dire que le jet s'affine en sortie de buse, comme illustré sur la figure 1.5.

La relaxation du profil de vitesse s'opère par diffusion de la quantité de mouvement à travers la section du jet en un temps $t \sim \rho h_0^2/\eta$. La distance nécessaire à la relaxation est donc $l = ut \sim \bar{l}uh^2/\nu$, où \bar{l} est une distance adimensionnée, qui d'après [84] est de l'ordre de 10^{-2} . Comme nous le verrons au chapitre 3, dans le cas de liquides visqueux avec une faible vitesse à la buse, l peut être négligeable devant h_0 , et la distance typique de relaxation devient donc le diamètre h_0 .

1.1.3 Derniers instants d'un pincement

Comme évoqué à la section 1.1.2, la majeure partie du temps de fragmentation est passée dans la croissance de l'instabilité. Cependant, à mesure que l'instabilité croît, la forme du jet évolue de plus en plus significativement, en particulier au voisinage des sections les plus minces qui deviendront les lieux de pincement. De nouvelles formes émergent, qui peuvent conduire à la génération de gouttes secondaires, ou satellites, beaucoup plus petites que les gouttes primaires. Ainsi, bien que les derniers instants précédant le pincement d'un jet soient brefs, ils peuvent aussi être importants pour la fragmentation d'un jet.

Un pincement peut être vu comme une singularité en temps fini : le diamètre minimum du jet, noté h_{\min} , tend localement vers un diamètre nul en un temps fini qui sera noté t_0 . À l'approche du pincement, les échelles initiales (h_0 et τ) ne sont plus pertinentes. Les seules échelles caractéristiques deviennent le diamètre minimal h_{\min} et la durée $t_0 - t$ restant avant le pincement. Dans ces conditions, le pincement est bien décrit par des solutions auto-similaires, c'est-à-dire invariantes par certaines dilatations de l'espace et du temps. Dans la limite des faibles Oh , seules l'inertie et la tension de surface jouent. L'analyse

dimensionnelle impose alors, [45]

$$h_{\min}(t) \sim \left(\frac{\sigma}{\rho} (t_0 - t)^2 \right)^{1/3}. \quad (1.7)$$

En accord avec les observations, la solution auto-similaire complète prédit que la forme du pincement est asymétrique, avec, au niveau de la goutte se détachant, un retournement du profil [81] et un rapport d'aspect $\simeq 1$ (voir figure 1.6). Pour des nombres de Ohnesorge très grands devant 1, où la compétition viscosité/tension de surface est à considérer, l'évolution temporelle du diamètre minimal dérivée par Papageorgiou [71] prend la forme

$$h_{\min}(t) \sim \frac{\sigma}{\eta} (t_0 - t). \quad (1.8)$$

Dans ce régime, l'échelle de longueur axiale du pincement (suivant z) diminue moins vite que le diamètre minimal et les formes observées sont alors allongées.

Il est important de noter que le même régime de pincement ne perdure pas nécessairement jusqu'à la séparation du jet. Ainsi, dans les derniers instants du pincement, venant des $Oh \ll 1$, la taille réduite du système a pour conséquence de faire revenir la viscosité (en plus de l'inertie) en compétition avec la tension de surface, et, venant des $Oh \gg 1$, les vitesses de pincement mises en jeu font revenir l'inertie (en plus de la viscosité) en compétition avec la tension de surface. Dans tous les cas, suffisamment proche de t_0 , à la fois l'inertie, la viscosité et la tension de surface sont à prendre en compte et c'est Eggers [27] qui dérive une loi d'amincissement, de même forme que 1.8 à un préfacteur d'ordre 1 près. La transition vers ce régime d'amincissement intervient pour des diamètres $h \sim h_0 Oh^{2/(2\beta-1)}$, $\beta \simeq 0.175$. En même temps que la fragmentation se localise, et que le filament créé entre deux renflements s'étire, sur ce dernier, peuvent croître des perturbations amenant à la formation de gouttes dites *satellites*, de plus petit diamètre que les gouttes primaires [54].

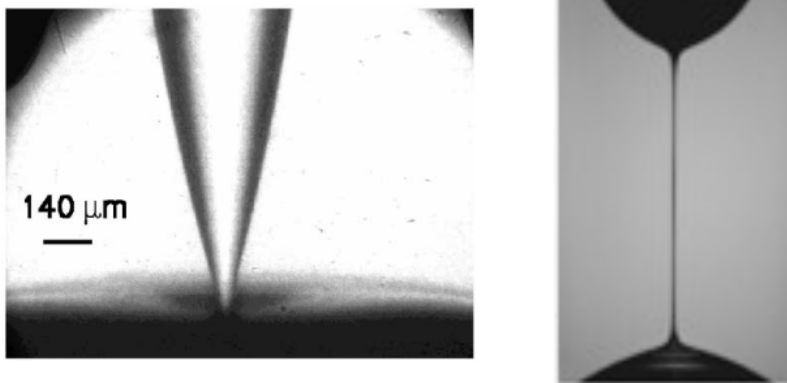


FIGURE 1.6 – Gauche : Pincement d'un jet très peu visqueux montrant un retournement du profil juste avant la fragmentation. Droite : Pincement d'un liquide visqueux exhibant un filament très allongé et symétrique. Tirés de [18] [16]

1.1.4 Fluides non-newtoniens

Jusqu'ici nous n'avons évoqué que le cas des jets de fluides newtoniens. Pour ces derniers, les contraintes développées sont proportionnelles au taux de déformation appliqué (à travers la viscosité). Dans le cas où elles ne sont plus proportionnelles au taux de déformation, les fluides sont dits non-newtoniens. On ne peut donc plus associer une unique viscosité au fluide (voir section 1.2.1). Le fluide peut être à seuil, c'est-à-dire présentant une contrainte non nulle pour un taux de déformation nul (voir figure 1.7), rhéo-fluidifiant, rhéo-épaississant ou encore viscoélastique [41]. En pratique, il s'agit de fluides tels que des fondus de polymères, des émulsions ou des mousses. Certaines suspensions de particules peuvent aussi faire émerger de tels d'effets (*e.g.* Maïzena en suspension dans l'eau). Dans tous ces cas, la microstructure du fluide varie au cours du temps.

Tout d'abord, abordons le cas des fluides rhéo-fluidifiants, devenant de moins en moins visqueux à mesure que le taux de déformation appliqué augmente. Au niveau du pincement d'un jet, le taux de déformation $\dot{\gamma}$ est proportionnel à $-h_{\min}/h_{\min}$. Ce rapport augmente à mesure que h_{\min} diminue. Pour ces fluides, les contraintes étant proportionnelles à $\dot{\gamma}^\alpha$, où $\alpha < 1$ ($\alpha = 1$ pour un fluide newtonien), la dynamique de rupture est d'autant plus accélérée que α approche 0 [26], comme illustré sur la figure 1.7. En d'autres termes $h_{\min} \propto (t_0 - t)^\alpha$. Les formes de pincement s'en trouvent aussi affectées. Le taux de déformation étant non-uniforme et maximal à l'endroit où le jet s'amincit le plus vite, les pincements peuvent devenir très localisés.

Le cas des fragmentations de fluides rhéo-épaississant a lui été étudié dans la configuration de jets, qui peuvent présenter des sections de jet liquides et d'autres similaires à un solide (jet de Maïzena [70, 79]), ou retarde considérablement le pincement d'un jet (suspension de polymères [1, 34, 62])

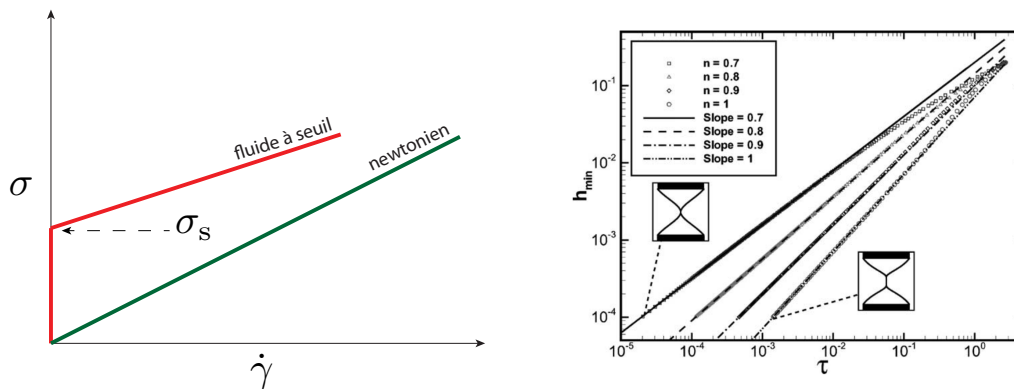


FIGURE 1.7 – Gauche : relation typique contrainte/taux de déformation pour un fluide à seuil et un fluide newtonien. Dans le cas d'un fluide à seuil. Une goutte de fluide à seuil ne se pince pas tant que la contrainte s'exerçant sur la striction est inférieure à σ_s . Droite : évolution du diamètre minimum d'un pont capillaire à l'approche de la singularité pour différents fluides rhéo-fluidifiants. La forme typique d'un pont capillaire ($\alpha = 0.7$) est comparée au cas visqueux newtonien ($\alpha = 1$) où $h_{\min} \propto (t_0 - t)^\alpha$. Tiré de [26]

C'est Coussot et *al.* [24] qui, les premiers, abordent le cas de la fragmentation des fluides à seuil (comme c'est le cas du ketchup par exemple) dans le régime goutte-à-goutte. Pour qu'une goutte se détache, son poids doit être suffisant pour que la contrainte seuil soit dépassée au niveau de la striction. Une fois le seuil dépassé, un poids constant (le poids de la goutte) est appliqué sur une striction dont la section diminue au cours du temps. Ceci produit une fragmentation constamment accélérée, avec dans le cas du pincement d'un pont capillaire de gel pour cheveux, $h_{\min} \propto (t_0 - t)^{0.46}$ [42].

1.1.5 Bruit et déformation

Les jets peuvent aussi être soumis à des sollicitations qui induisent des formes plus complexes que des jets uniquement étirés par gravité. Ce sont aussi ceux que l'on rencontre le plus souvent dans la nature. Les fluides corporels éjectés lors d'un éternuement en sont un exemple. Un jet d'eau s'écoulant au travers d'une buse très agitée en est un autre. Les jets formés dans ces cas-là ont des variations de diamètre qui sont du même ordre de grandeur que le diamètre local. Ils donnent aussi naissance à des gouttes dont la distribution de tailles est très large, contrairement au cas d'un filament bien régulier où la longueur d'onde la plus instable va déterminer la taille des gouttes formées [30] (plus quelques gouttes satellites, voir figure 1.8).

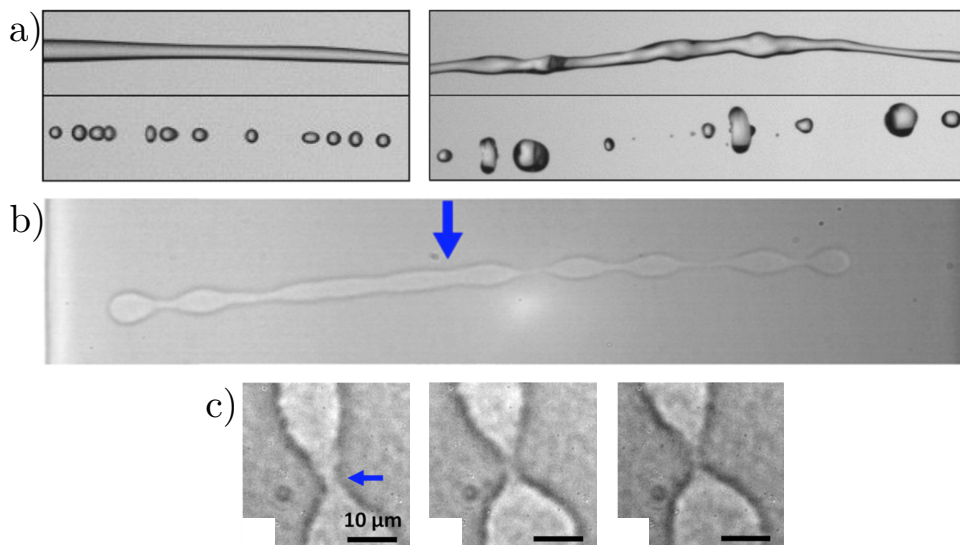


FIGURE 1.8 – a) Fragmentation d'un jet initialement « lisse » (à gauche) et d'un jet initialement perturbé (à droite), tiré de [30]. b-c) Déstabilisation puis rupture d'un jet micrométrique soumis à des fluctuations thermiques, tiré de [73].

À une plus petite échelle, pour des jets nanométriques, c'est le bruit thermique qui peut

cette fois modifier la dynamique de rupture des jets comme l'a démontré théoriquement Eggers pour la première fois [29]. Il fait état d'un pincement dont le diamètre minimum décroît comme $(t_0 - t)^{0.418}$, dans ce cas aussi, le pincement est accéléré à l'approche de la brisure. Une étude expérimentale réalisée par Petit et *al.* [73], révèle qu'une colonne de liquide visqueux ($h_0 \simeq 10 \mu\text{m}$) déstabilisée par une instabilité de Plateau-Rayleigh voit le diamètre des strictions décroître selon la loi (1.8) pour en toute fin de dynamique, lorsque h_{\min} est de l'ordre de 100 nm, s'amincir selon une loi de puissance $h_{\min} \propto (t_0 - t)^{0.42}$. Le diamètre à partir duquel est observée la déviation à la loi (1.8) se trouve proportionnel à la longueur de corrélation des fluctuations thermiques. Des formes très symétriques sont observées à la rupture ainsi qu'une diminution du nombre de gouttes satellites.

1.2 Rhéologie des suspensions particulières

Nous abordons maintenant les suspensions particulières, c'est-à-dire un ensemble de particules immergées dans un liquide, en nous focalisant sur leur comportement dans des écoulements simples.

1.2.1 Suspension de particules sphériques

Considérons d'abord le cas le plus simple d'une suspension de billes solides, sphériques et mono-disperses suspendues dans un liquide newtonien de même densité. Pour des billes indéformables, sans interaction à distance et suffisamment grosses pour être insensibles à l'agitation brownienne, les seules grandeurs de la suspension sont le diamètre d des particules, la fraction volumique solide ϕ , ainsi que la densité ρ et la viscosité η_0 du liquide.

La rhéologie d'une telle suspension peut être caractérisée en la soumettant à un écoulement simple, en pratique un écoulement de cisaillement homogène. La suspension peut par exemple être placée dans un rhéomètre plan/plan (ou cône/plan) qui se compose d'une surface inférieure statique et d'une surface supérieure à laquelle est communiqué un mouvement de rotation permettant de cisailier la suspension située dans l'entrefer de taille e , comme indiqué sur la figure 1.9. Il y a alors deux degrés de liberté et donc deux contraintes, la pression et la scission, et deux grandeurs cinématiques associées, l'entrefer e contrôlant ϕ et le déplacement tangentiel de la plaque, contrôlant le taux de déformation $\dot{\gamma}$. Déterminer la rhéologie de la suspension c'est, par exemple, déterminer P et τ à ϕ et $\dot{\gamma}$ fixés (ou alternativement déterminer ϕ et $\dot{\gamma}$ à P et τ fixés). Dans le cas d'un entrefer très grand, le milieu peut être considéré comme infini, c'est-à-dire que la taille des sphères d ne rentre pas en compte dans la rhéologie. La suspension peut alors être décrite comme un milieu effectif.

La rhéologie d'une suspension dépend de la prépondérance de l'inertie ou de la viscosité à l'échelle des billes ainsi que des éventuels effets browniens. Il faut donc considérer le nombre de Reynolds particulaire

$$Re_p = \frac{\rho \dot{\gamma} d^2}{\eta_0} \quad (1.9)$$

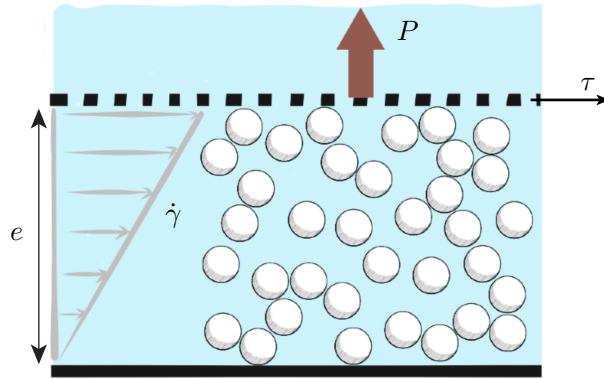


FIGURE 1.9 – Schéma d'une suspension cisillée dans un rhéomètre à pression imposée. La paroi supérieure est perméable au liquide et la pression s'y exerçant résulte des chocs entre billes. Tiré de [?]

et le nombre de Péclet :

$$Pe = \frac{6\pi\eta_0\dot{\gamma}d^3}{k_B T} \quad (1.10)$$

qui compare le poids relatif du mouvement d'advection dû au cisaillement et du mouvement dû à l'agitation thermique. Pour les suspensions considérées ici, Pe sera toujours plusieurs ordres de grandeur plus grand que 1.

Pour un nombre de Reynolds particulière très faible ($Re_p \ll 1$) l'inertie et donc la densité ne jouent plus. L'écoulement du liquide est un écoulement de Stokes et la seule échelle de force est $\eta_0\dot{\gamma}$. Cela a deux conséquences majeures :

- La rhéologie est pseudo-newtonienne en cela que l'on peut définir une viscosité effective du système, qui ne dépend pas de $\dot{\gamma}$.
- τ et P sont proportionnels à $\eta_0\dot{\gamma} \times f(\phi)$, où $f(\phi)$ est une fonction dépendant de la fraction volumique solide ϕ qui est le seul autre paramètre à prendre en compte pour une telle suspension.

On peut donc écrire la contrainte visqueuse comme

$$\tau = \eta_s(\phi)\dot{\gamma}, \quad (1.11)$$

où $\eta_s(\phi) \propto \eta_0$ est la viscosité effective de cisaillement et la pression particulière comme $P = \eta_n(\phi)\dot{\gamma}$, avec $\eta_n(\phi) \propto \eta_0$ la viscosité effective normale. Notons que ces résultats peuvent être exprimés de façon équivalente en fonction du nombre sans dimension $J = \eta_0\dot{\gamma}/P$ [15].

Usuellement, pour décrire le comportement rhéologique d'une suspension de particules, on trace la viscosité relative en fonction de la fraction volumique. Pour une suspension de billes telle que décrite ci-dessus, il existe bon nombre d'expériences et de corrélations dans la littérature, elles sont rassemblées dans la figure 1.10. La viscosité relative est une fonction croissante de ϕ , qui diverge autour d'une fraction volumique critique notée ϕ_c comprise entre 56 et 64%, d'après les expériences menées en rhéologie plan/plan, cône/plan

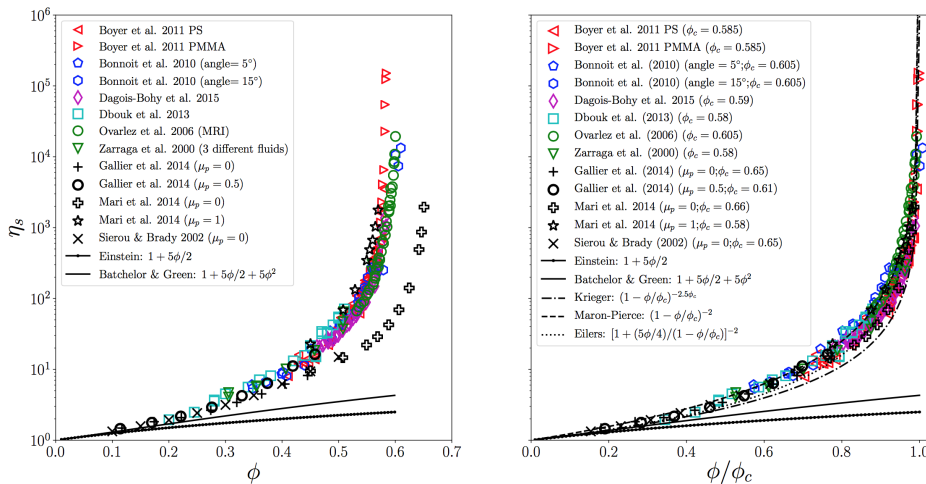


FIGURE 1.10 – Gauche : résumé de mesures de la viscosité relative mesurée en cisaillement en fonction de ϕ trouvées dans la littérature. Droite : les mêmes données mais tracées en fonction de ϕ/ϕ_c pour souligner la divergence de viscosité à ϕ_c . Extrait de [?]

ou encore en plan incliné. Des différentes corrélations que l'on peut trouver dans la littérature, que ce soit Krieger [49] $((1 - \phi/\phi_c)^{-2.5\phi_c})$, Maron-Pierce [58] $((1 - \phi/\phi_c)^{-2})$, Eilers [31] $((1 + 1.5(\phi/(1 - \phi)/\phi_c))^2)$ ou Boyer [12] $(1 + 2.5\phi(1 - \phi/\phi_c)^{-1} + \mu(\phi)(\phi/(\phi_c - \phi))^2)$, se dégage un consensus sur la forme de la divergence de η_s à ϕ_c qui suit $\eta_s/\eta_0 \sim (\phi - \phi_c)^{-2}$. ϕ_c représente donc la fraction volumique à partir de laquelle une déformation stationnaire n'est plus possible pour des billes indéformables. Au-delà de ϕ_c , la suspension peut être transitoirement cisailée (lors d'un choc par exemple), mais passée une certaine amplitude de déformation, la suspension se bloque ou se dilate.

Les variations de la valeur de la fraction volumique critique ($0.56 < \phi_c < 0.64$) sont d'abord liées à la présence de contacts entre les particules et dépend donc de leur coefficient de friction μ_p . Ce paramètre est très délicat à déterminer, dépendant à la fois de la rugosité de surface et du fluide dans lequel les particules sont suspendues. La valeur de ϕ_c est aussi fortement dépendante de la distribution de tailles des billes. Plus leur distribution est large, plus ϕ_c est grande, les plus petites billes participant à augmenter la fraction solide tout en pouvant se loger dans les interstices entre les plus grosses sans bloquer la suspension.

Bien que les suspensions aient une viscosité effective de type newtonien, au contraire d'un fluide purement newtonien, elles peuvent développer des contraintes normales non isotropes dans un écoulement de cisaillement simple. Il convient alors de comparer les contraintes normales développées entre chacune des directions. Ces différences sont habituellement notées N_1 (*resp.* N_2) et définies comme la différence entre la contrainte dans la direction normale à l'écoulement et la direction de l'écoulement (*resp.* direction de la vorticit ). Premièrement, N_1 et N_2 sont faibles pour $\phi \lesssim 20\%$, ou en tous cas, leurs amplitudes sont bien moindres que les contraintes de cisaillement. Au del  d'une fraction volumique de 20%, l'apparition de diff rences de contraintes normales  tant corr l e  

une nette augmentation des contacts entre billes, on s'attend à trouver un N_2 négatif car les contacts dans le plan de cisaillement sont les plus nombreux, cette hypothèse étant vérifiée expérimentalement. Prédire le signe de N_1 est moins évident et, pour l'heure, les expériences ne permettent pas de trancher quant à la valeur de son signe, cependant N_1 reste petit en comparaison de N_2 .

À titre de remarque, nous n'avons considéré ici que les suspensions relativement concentrées ($\phi \geq 20\%$) où les contacts entre particules sont omniprésents. Pour les suspensions diluées, où les contacts ne jouent aucun rôle et les interactions entre billes sont d'ordre purement hydrodynamique, une viscosité effective peut aussi être définie, et même calculée, ce qui a été fait par Einstein une première fois en 1906 [32], avant qu'une correction au calcul soit proposée en 1911 [33], pour finalement obtenir $\eta_e = \eta_0(1 + 2.5\phi)$. Expérimentalement, cette prédiction n'est vérifiée que jusqu'à $\phi \simeq 1\%$. Dans ces régimes, la viscosité normale est prédite nulle et n'est en pratique pas mesurable. Une correction au second ordre en ϕ est obtenue par Batchelor [4, 5], qui permet de prédire son évolution jusqu'à $\phi \simeq 5\%$.

1.2.2 Suspensions de fibres

Après les particules à géométrie sphérique, ce sont sur les fibres que se sont penchées les études à propos des suspensions. À la différence des sphères, ces particules ont deux tailles caractéristiques, à savoir, leur diamètre d et leur longueur l , qui définissent un nouveau paramètre caractéristique de ces suspensions : le rapport d'aspect l/d , mesurant la nature plus ou moins élastique des fibres. Les fibres considérées ici auront pour dénominateur commun $l/d \gg 1$.

Selon leur rapport d'aspect et leur concentration, des fibres suspendues dans un liquide peuvent interagir de diverses manières et que l'on distinguera en quatre régimes. Nous raisonnerons sur le nombre de fibres par unité de volume $N = 4\phi/\pi d^2 l$.

Le premier cas concerne les suspensions diluées, alors, la distance entre fibres est grande devant leur longueur et Nl^3 , qui correspond aussi à une densité volumique adimensionnée, est très faible devant 1, autrement dit, les sphères de diamètre l restent espacées. À partir de $Nl^3 = 1$, qui constitue la borne inférieure du régime de concentration semi-dilué, les sphères formées par la rotation des fibres s'interpénètrent, cependant les disques de diamètre l et d'épaisseur d restent suffisamment distants, $Nl^2 d$ reste faible devant 1. Lorsque $Nl^2 d$ devient du même ordre que 1, les fibres deviennent très rapprochées, c'est-à-dire que l'espacement moyen entre les fibres est inférieur à leur longueur et les fibres entrent facilement en contact. Enfin, on désignera par *nématique*, une suspension pour laquelle $Nl^2 d$ devient très grand devant 1. Dans ce cas, les fibres ont une organisation cristalline au sens des orientations et sont très rapprochées les unes des autres.

De la même manière que pour les suspensions de billes sphériques, les interactions hydrodynamiques ainsi que les contacts entre les fibres ont pour effet d'augmenter la viscosité effective de la suspension relativement à celle du fluide pur. Même si la géométrie

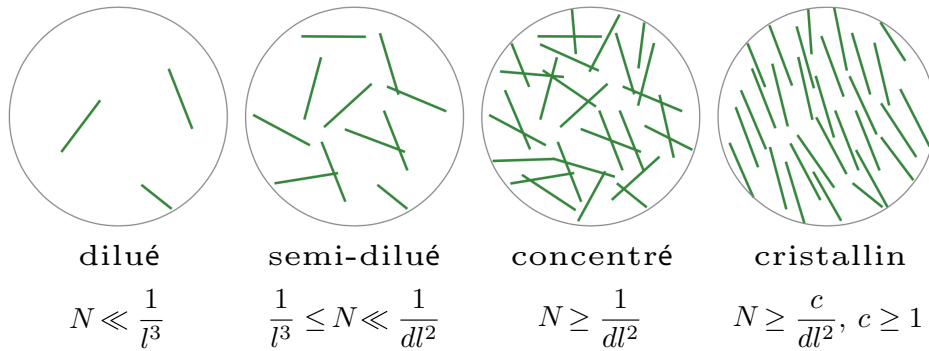


FIGURE 1.11 – Schémas représentatifs des différents régimes de concentration pour des fibres en suspension dans un liquide. Tiré de [14]

des particules est bien différente des billes, la seule échelle de temps reste $\dot{\gamma}^{-1}$ et ces viscosités sont aussi indépendantes du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$. De même, la seule échelle de force est proportionnelle à $\eta_0 \dot{\gamma}$, donc τ et P sont là aussi proportionnels à $\eta_0 \dot{\gamma} \times g(\phi)$, cette fois-ci, la fonction faisant intervenir la fraction volumique n'est pas nécessairement la même que dans le cas des billes. On définira alors aussi pour ces suspensions, une viscosité effective de cisaillement η_s ainsi qu'une viscosité effective normale η_n .

Ces viscosités divergent aussi à une certaine fraction volumique ϕ_c qui est une fonction décroissante de l/d . Ceci se comprend bien en raisonnant sur la sphère créée par la rotation d'une fibre. Augmenter l/d , toutes choses égales par ailleurs, revient à augmenter le nombre de contacts au sein de la suspension. À grand l/d , les fibres se gênent plus et la suspension devient rapidement impossible à déformer de manière stationnaire. Par exemple, pour une suspension de fibres $l/d = 10$, Tapia et *al.* [86] mesurent $\phi_c \simeq 0.40$. Il n'existe que très peu de travaux sur la forme de la divergence à ϕ_c , cependant ces mêmes travaux constatent une divergence de la viscosité effective en $(\phi_c - \phi)^{-1}$.

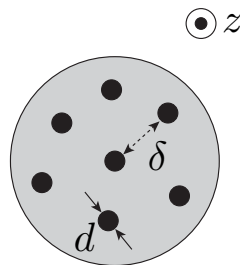


FIGURE 1.12 – Vue en coupe d'une suspension de fibre étirée selon l'axe z . Les fibres de diamètre d sont supposées parfaitement alignées et espacées d'une distance δ .

Dans le cas particulier d'un écoulement élongationnel (voir section suivante), ces fibres peuvent s'aligner si leur concentration est suffisamment faible ($nl^2d \lesssim 1$). C'est Batchelor, qui obtient, successivement en 1970 et en 1971, une prédiction de la viscosité effective dans le cas dilué ($nl^3 \lesssim 1$) [2] et concentré ($nl^3 \gtrsim 1$) [3]. Les deux prédictions stipulent que $\eta_{\text{élongationnelle}} \sim \eta_0 \phi (l/d)^2$, à un préfacteur logarithmique près qui, dans le cas dilué, fait intervenir le rapport d'aspect des fibres, tandis que dans le cas concentré, le préfac-

teur logarithmique exhibe une dépendance en ϕ . Dans le cas concentré, la dépendance en $(l/d)^2$ peut être comprise simplement en considérant le glissement entre deux fibres voisines au sein d'un écoulement élongationnel et distantes de δ en raisonnant sur une tranche de l'écoulement comme présenté sur la figure 1.12. Les fibres étant alignées selon la direction de l'écoulement, la fraction volumique solide d'une tranche de suspension est $\phi \sim d^2/\delta^2$. La vitesse relative Δu entre les deux fibres est typiquement $\dot{\epsilon}l$, où $\dot{\epsilon}$ est le taux d'élongation appliqué à la suspension. La puissance dissipée dans le fluide entre les fibres est donc $\propto \eta_0(\Delta u/\delta)^2$. Or, par définition d'une viscosité effective, cette puissance dissipée est aussi $\eta_{\text{élongationnelle}}\dot{\epsilon}^2$, d'où la loi d'échelle $\eta_{\text{élongationnelle}}/\eta_0 \propto (\Delta u/\delta)^2 \dot{\epsilon}^2 \propto (l/d)^2$. Il n'est cependant fait état d'aucune prédiction dans le cas où les fibres ont des orientations isotropes comme cela peut être le cas dans les suspensions très concentrées [46,56,74].

Nous ne nous sommes, à ce stade, pas occupé du caractère déformable des particules en suspension. Bien que les particules sphériques ne sont déformables que lorsqu'elles sont soumises à de fortes pressions ou cisaillements de l'ordre de grandeur de leur module d'Young (\sim GPa), pour une fibre, les effets de bras de levier exercés par les contraintes visqueuses peuvent en revanche la fléchir. Pour déterminer le seuil de flexion, il faut typiquement équilibrer les forces visqueuses, d'ordre $\eta_0\dot{\gamma}l^2$, et les forces élastiques, d'ordre $E \times d^4/l^2$, où E est le module d'Young du matériaux. Le critère de flexion prend la forme d'un nombre sans dimension appelé le nombre de Sperm S_p et dont l'expression exacte établie par Becker et Shelley [6] est : $S_p = 128\eta_0\dot{\gamma}(l/d)^4/[E\ln(2l/d)]$. Ce critère est établi pour une fibre isolée et qu'il n'est certainement plus valable pour une assemblée de fibres où les forces s'appliquant sur une fibre peuvent être beaucoup plus importantes que dans un liquide pur. Une étude de Perrazo *et al.* [72], se penchant sur le cas des fibres très flexibles ($l/d \simeq 300$, $E \simeq 10^5$ Pa) suggère que cette flexibilité peut donner lieu sous cisaillement à un réseau de fibres nouées faisant apparaître une contrainte de déformation seuil.

1.2.3 Écoulements élongationnels

Les écoulement induits par cisaillement sont certainement les plus couramment étudiés dans la littérature car ils sont simples à mettre en oeuvre expérimentalement. Cependant, l'étude des jets implique de connaître le comportement d'une suspension soumise à un écoulement élongationnel (un étirement maintenu dans la même direction sans rotation). Pour un liquide newtonien, la viscosité est indépendante du type de déformation. Les contraintes visqueuses dans une direction donnée en dépendent seulement au travers d'un coefficient d'ordre 1, dit de Trouton [89]. Ainsi, pour l'écoulement élongationnel, axisymétrique à interface libre d'un jet, la résultante axiale des contraintes visqueuses est $3\eta\partial u/\partial z$, où le rapport de Trouton vaut ici 3 (pour un liquide newtonien). Toute la question est de savoir si ce rapport de Trouton est conservé pour une suspension de particules, qui, comme nous le verrons à la section 1.2.1, peut développer des différences de contraintes normales sous cisaillement.

Pour les suspensions de billes sphériques, les récentes simulations réalisées par Seto

et *al.* [83] suggèrent que le rapport de Trouton est similaire au cas newtonien pour des suspensions denses légèrement polydisperses. Résultats corroborés par Cheal et *al.* [17] qui montrent que ce rapport de Trouton reste inchangé jusqu'à ϕ_c mais divergeant à l'approche de ϕ_c pour des sphères avec des particules frictionnelles.

Pour des fibres parfaitement alignées, l'augmentation du rapport de Trouton a été prédit par Batchelor [3] et est proportionnel au rapport d'aspect au carré, comme évoqué à la section 1.2.2. Ceci a été confirmé expérimentalement pour le cas de suspensions modérément concentrées par Mewis et Metzner [63], Weinberger et Goddard [93] et Kizior et Seyer [47] en 1974 ainsi que par Pittman et Bayram [75] en 1990.

1.2.4 Migration

Il a, jusqu'ici, été question d'approcher la suspension comme un système effectif à une phase, sans distinguer la phase solide de la phase liquide et donc sans prendre en compte l'éventuel écoulement des particules par rapport au fluide suspendant. Cependant, les écoulements de la phase particulaire ne peuvent pas être ignorés pour les écoulements inhomogènes tels que l'écoulement de Poiseuille, représenté sur la figure 1.13. Les gradients de taux de cisaillement induisent en effet des gradients de contraintes particulaires, car comme évoqué à la section 1.2.1, $P \propto \eta_0 \dot{\gamma} \times f(\phi)$. Ces gradients de contraintes particulaires génèrent des flux de particules relativement au liquide qui se traduisent par une migration des particules, mise en évidence par Gadala-Maria et *al.* [39] ainsi que par Leighton et *al.* [53]. Pour prendre le cas d'un écoulement de Poiseuille, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ est plus élevé aux parois. À mesure que la suspension s'écoule, elle se dilue aux parois pour se concentrer au centre. Cette migration rétroagit sur l'écoulement car la viscosité est affectée par l'évolution de la concentration en particules jusqu'à ce qu'un équilibre des pressions particulaires soit atteint.

Le temps de migration des sphères peut être estimé en raisonnant sur l'écoulement du fluide par rapport à celles-ci. De la même manière que l'écoulement d'un fluide au travers d'un poreux est limité par la taille des pores et proportionnel à la viscosité du fluide, le temps de migration est proportionnel à $h^2/d^2/\dot{\gamma}$.

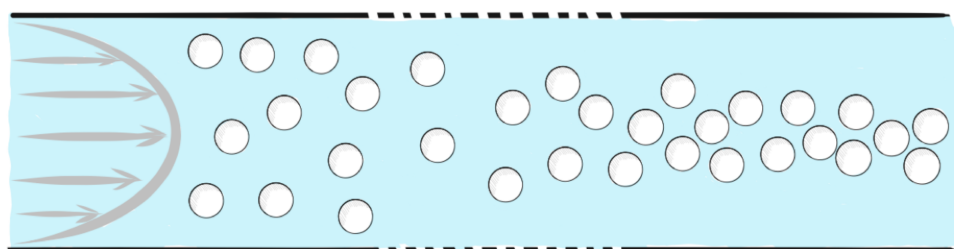


FIGURE 1.13 – Schéma d'un écoulement de Poiseuille dans une conduite cylindrique infinie (matérialisée par les pointillés). Mises sous écoulement, du fait des gradients de pression particulaire dans la direction perpendiculaire à la direction de l'écoulement, les sphères ont tendance à déplerter la conduite aux abords des parois pour se concentrer au centre de celle-ci, tiré de [?]

Cette migration se manifeste aussi dans le cas de l'écoulement d'une suspension dense au passage d'une constriction (*e.g.* la buse d'une seringue). La différence de taux de cisaillement due à la réduction du diamètre de la conduite induit des écoulements différentiels entre le liquide et les particules et par conséquent, une auto-filtration de la suspension. Selon Kulkarni *et al.* [50], pour une fraction volumique de 0.58 en amont de la constriction et une constriction dont le diamètre vaut 5 fois celui des billes, la dilution en aval est de typiquement 12%. À noter que cette auto-filtration intervient indépendamment du débit à condition que la suspension soit suffisamment visqueuse pour négliger tout effet inertiel et dépendant directement du rapport taille des billes/taille de l'écoulement. Ceci nous amène naturellement aux effets liés à la granularité.

1.2.5 Granularité

Le description effective (à une ou deux phases) discutée échoue à décrire l'écoulement à toutes les échelles. La taille d des billes est en effet prépondérante pour les petits systèmes, c'est-à-dire les systèmes confinés, dont la taille est comparable à d . À cette échelle, une grandeur effective comme la viscosité n'a plus de sens pour décrire le comportement sous écoulement de la suspension.

Cette échelle de taille est prépondérante pour les systèmes à bas ϕ , qui sont plus sensibles aux fluctuations aléatoires de densité de particules et pouvant induire des fluctuations locales de viscosité au sein de la suspension [60].

Au sein d'une suspension concentrée, le déplacement d'une bille engendre nécessairement le déplacement de plusieurs de ses voisines. La distance sur laquelle le système « perçoit » le mouvement d'une sphère peut être définie comme la longueur de corrélation des déplacements fluctuant, que l'on dénomme ξ , et qui est naturellement proportionnelle à d . Les simulations réalisées pour une suspension de billes cisailée (où ϕ est proche de ϕ_c) arrivent à la conclusion que $\xi/d \sim (\phi_c - \phi)^\alpha$, où $\alpha \simeq 0.43$ ou 0.6 selon Trulsson *et al.* [90] ou Olsson *et al.* [68]. Les longueurs de corrélation deviennent d'autant plus grande que la fraction volumique approche ϕ_c .

Une conséquence directe est que, par exemple, dans le rhéomètre décrit à la figure 1.9, pour un entrefer de taille e inférieure à ξ , la suspension ne peut plus être décrite comme un milieu infini (où la taille d ne rentre pas en compte).

Parmi les effets de confinement, on peut aussi évoquer l'organisation en couches à la paroi comme observé dans un écoulement confiné au travers des simulations de Fornari *et al.* [35], qui, modifiant localement la microstructure de la suspension, a pour effet de diminuer le poids des contraintes particulières (*e.g.* peut modifier la valeur de N_1 (voir 1.2.1)). De même, des forces répulsives entre les particules et les parois peuvent mener à des effets de glissement à la paroi, pouvant biaiser, par exemple, une mesure de viscosité.

Enfin, notons que quelle que soit la taille des particules, millimétrique ou microscopique, celles-ci sont soumises à des forces d'interaction à distance répulsives ou bien attractives. Cependant, seulement les particules dont la taille est suffisamment réduite sont susceptibles d'y être sensible en pratique. Lorsque d devient petit, de l'ordre de $10\ \mu\text{m}$ ou plus petit, les diverses forces (Van der Waals, couche de Debye, polymères greffés à la surface des particules) peuvent empêcher les particules de rentrer en contact, ou, au

contraire, les faire s'attirer et former des agrégats. Dans tous ces cas, il existe alors d'autres échelles de temps et de forces que celles décrites plus haut qui peuvent faire émerger des comportements non-newtoniens [36], telles les forces répulsives entre grains d'amidon responsables du caractère rhéo-épaississant de la Maïzena [22, 23, 94].

1.3 Les jets de suspension

Nous arrivons enfin à l'état de l'art sur les jets capillaires de suspensions. Ce sont des jets de suspension, millimétriques ou sub-millimétriques, au sein desquels sont suspendues des particules solides macroscopiques (*e.g.* billes sphériques ou fibres non-colloïdales). Ils constituent un domaine émergeant, encore peu étudié et faisant intervenir à la fois les effets capillaires qui pourraient être modifiés par la présence de particules piégées à l'interface liquide-air, la rhéologie de la suspension, les effets de confinement des particules ainsi que les fluctuations engendrées par la présence de particules. En effet, pour ces systèmes là, les échelles mises en jeu, à savoir la taille d des particules et le diamètre h du jet, vont nécessairement devenir comparables au cœur de l'écoulement et de la brisure du jet.

1.3.1 Historique de l'étude du sujet

Les premières études concernant les jets de suspensions de particules macroscopiques ont été réalisées il y a un peu plus de dix ans par Furbank et Morris [37, 38]. Ces auteurs se sont intéressés aux jets et gouttes de suspensions de billes sphériques dans des fluides visqueux à différentes fractions volumiques. Ils ont dans un premier temps comparé la forme des gouttes de suspension à celles produites par un liquide pur. Ils apportent les premières quantifications de taille des gouttes créées et de la longueur du jet en fonction du débit à la buse, mais aussi une quantification du nombre de gouttes satellites créées à mesure que ϕ est augmenté. Ils font aussi les premières observations concernant la transition goutte-à-goutte/jet, qui, à viscosité effective équivalente, intervient à des débits plus faibles pour une suspension de particules. Dans la deuxième partie de leurs travaux, ils abordent les questions liées au temps de pincement d'une goutte pendante et mettent en lumière deux régimes distincts : un régime continu et un régime faisant intervenir les effets discrets liés aux particules.

Des expériences similaires ont été réalisées par la suite par Bertrant et *al.* [7], Bonnoit et *al.* [9] ainsi que van Deen et *al.* [91] pour les mêmes régimes de concentration. Plus tard, Miskin et *al.* [64] se sont aussi intéressés au détachement d'une goutte pendante, pour des suspensions beaucoup plus concentrées (ϕ proche de ϕ_c). Par la suite, afin de quantifier plus précisément la dynamique de rupture du filament, Lindner et *al.* [55], Moon et *al.* [65, 66], Mathues et *al.* [60] et McIlroy et *al.* [61] ont étudiés des configurations de ponts capillaires étirés (aussi appelées CaBER pour Capillary Breakup Extensional Rheometer), permettant un meilleur contrôle de l'étirement.

1.3.2 Approche effective/non-effective

Pour les différentes configurations et suspensions étudiées, Furbank et Morris ont naturellement distingué des comportements semblables à un fluide newtonien, où la suspension peut être considérée comme un fluide effectif, et des déviations systématiques à ces comportements de fluide newtonien. Nous détaillons d'abord les principaux résultats concernant les suspensions qui nous intéresseront dans cette thèse, à savoir celles pour lesquelles $0.20 \lesssim \phi \lesssim 0.50$. Les viscosités des liquides purs utilisés dans ces différentes études sont quant à elles de $10^{-1} \text{ Pa} \cdot \text{s} \lesssim \eta_0 \lesssim 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, ce qui correspond à un nombre de Ohnesorge $0.1 \lesssim Oh \lesssim 1$. Le cas des suspensions plus diluées ou très concentrées sera traité à part. Voici donc une liste des observations faites dans ces deux premiers articles :

- Sur la forme d'une goutte pendante se détachant d'une buse : alors que pour un fluide visqueux, un long et fin filament est créé jusqu'à ce que la goutte se détache, pour les suspensions sont observées des formes en forme double-cône pour lesquelles le pincement est très localisé.
- Alors qu'à bas ϕ , quelques particules peuvent être piégées dans le filament pour former par la suite une goutte satellite, pour des ϕ plus élevés, le nombre de gouttes satellites est fortement réduit.
- La transition goutte-à-goutte/jet, à viscosité effective équivalente, intervient à des débits plus faibles pour une suspension que dans le cas du fluide pur. Si l'on s'en tient à l'équation 1.6, cette transition devrait intervenir aux mêmes vitesses dans les deux cas. De plus, cette transition, bien claire à bas ϕ , est comme « lissée » pour $\phi > 0.20$.
- Est fait mention pour la première fois d'un régime de milieu continu, loin en aval de la rupture du filament. Les temps mis en jeu durant l'amincissement les mêmes que pour un fluide pur de même viscosité effective. Ce régime est suivi d'une forte localisation du pincement, qui ne fait que s'accélérer et qui est imputée aux effets de taille finie introduits par les particules. Cependant, il n'est pas fait mention de critère clair sur la transition entre les deux régimes.

Ces premiers travaux ont été suivis d'autres études, corroborant ou non ses observations. On distinguera celles portant sur le régime de milieu continu de celles portant sur les déviations observées à ce premier régime.

Régime effectif :

- Les articles de Bonnoit et *al.* [9] et Bertrant et *al.* [7] se concentrent sur le détachement d'une goutte pendante pour $0.15 \leq \phi \leq 0.55$ et $20 \mu\text{m} \leq d \leq 140 \mu\text{m}$. La diminution du diamètre minimum h_{\min} du filament de suspension est directement comparée à celle d'un fluide pur de même viscosité effective, qui est extraite de la corrélation de Zarraga et *al.* [95] (avec $\phi_c = 0.62$). Il en ressort que dans les premiers instants, une suspension voit son h_{\min} diminuer de la même manière que le fluide pur de même viscosité effective, et ceci indépendamment de la taille des particules.
- Dans le même régime de concentration et pour $3 \mu\text{m} \leq d \leq 20 \mu\text{m}$, Mathues et *al.* [60] proposent d'utiliser un CaBER pour étudier l'évolution temporelle de h_{\min} . La loi 1.8

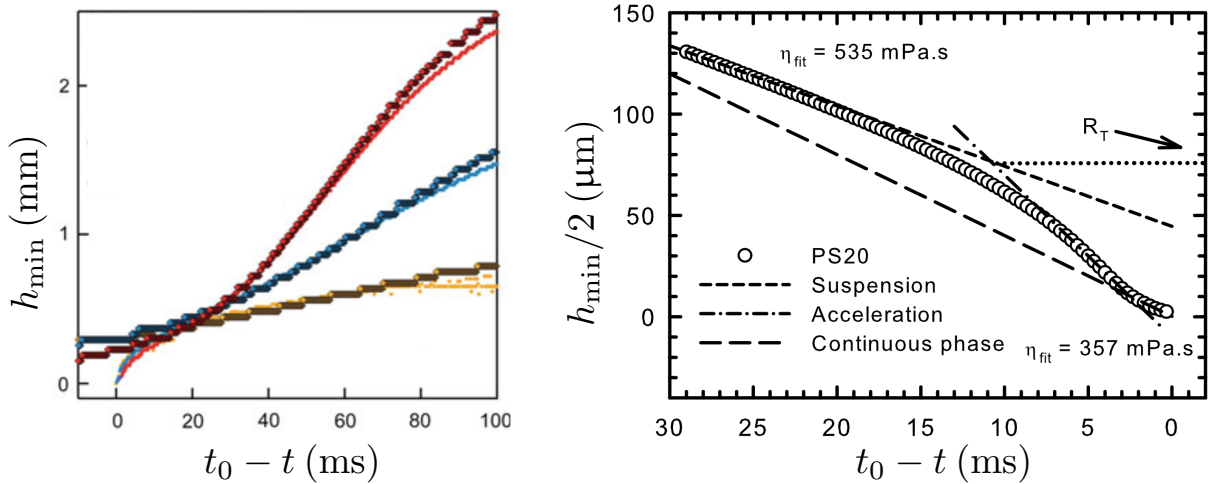


FIGURE 1.14 – Gauche : Évolution temporelle du diamètre minimum lors du détachement d’une goutte pendante pour $d = 40 \mu\text{m}$ et $\phi = 0.15$ (rouge), 0.40 (bleu) et 0.50 (jaune). Pour chaque fraction volumique est superposé $h_{\min}(t)$ pour un fluide pur de même viscosité effective. Droite : Évolution temporelle du rayon minimum d’un pont capillaire étiré (CaBER) faisant apparaître à $t_0 - t \gtrsim 15 \text{ ms}$, le régime linéaire prédit par 1.8 et utilisé pour en déduire la viscosité effective de particules de $20 \mu\text{m}$ suspendues à 10% dans un fluide de viscosité $\eta_0 = 0.36 \text{ Pa}\cdot\text{s}$. Le temps t_0 désigne le temps de pincement. Adaptées de [7] et [60]

pour le pincement visqueux auto-similaire est directement ajustée sur $h_{\min}(t)$ avec η_e pour seul paramètre ajustable. Les valeurs obtenues sont alors comparées à celles obtenues par la corrélation de Maron-Pierce [58] (avec $\phi_c = 0.64$) et se trouvent très proches : l’approche effective est une fois de plus vérifiée aux premiers instants du pincement.

Pour résumer, le régime de fluide effectif est unanimement observé, et, pour les deux configurations explorées, qui mettent en jeu des écoulements élongationnels, la viscosité de cisaillement η_s correspond à la viscosité effective observée. L’ajout de particules dans un fluide ne modifierait donc pas significativement le coefficient de Trouton, au moins dans les régimes de concentration explorés. Toutefois, la configuration CaBER semble plus avantageuse. Les filaments formés, plus proches de l’approximation « faible pente » nécessaire pour mesurer la viscosité effective par ajustement de $h_{\min}(t)$ à la loi (1.8). Dans le cas d’une goutte pendante, contrairement à l’amincissement d’un pont capillaire, les courbes de $h_{\min}(t)$ n’exhibent à aucun moment d’évolution linéaire (voir figure 1.14).

Déviations au régime effectif :

Tous les travaux réalisés sont en accord sur le fait que le régime de milieu effectif n’est jamais observé jusqu’à la rupture mais que l’amincissement est systématiquement accéléré lorsque h_{\min} passe en deçà d’une certaine limite.

- En utilisant la configuration de goutte pendante, [9] et [7] identifient un régime de

« fluide interstitiel » succédant au régime de fluide effectif et durant lequel le taux de pincement suit celui du fluide suspendant seul ($\phi = 0$). Ce régime est trouvé indépendant de d et de ϕ . Bonnoit *et al.* et Bertrant *et al.* sont les seuls à identifier ce régime, qui n'est pas mentionné pour le pincement d'un pont capillaire dans [60] ou [65] et [66] (configuration CaBER).

- Dans cette même configuration de goutte pendante sont observées des corrugations de l'interface et un pincement de plus en plus localisé à mesure que ϕ augmente.
- Suite à quoi est observée une déviation au régime effectif (*resp.* régime fluide interstitiel) dans la configuration CaBER (*resp.* goutte pendante) qui intervient à un diamètre h_{\min} dépendant à la fois de ϕ et de d . Dans ces deux études est observé que, jusqu'à $\phi = 0.40$, le diamètre critique d'apparition de cette déviation est équivalent à quelques diamètres de particules. Cette déviation, qui accélère le pincement du pont capillaire est attribuée à des effets discrets et [60] propose qu'elle est liée à des fluctuations aléatoires locales de la fraction volumique provoquant des variations de viscosité effective.
- Ce régime accéléré est finalement suivi d'un régime où seul le fluide suspendant est présent dans la striction (entre deux particules). Ici, la vitesse de pincement est essentiellement donnée par la vitesse de pincement du fluide [60].

Tous les résultats présentés ci-dessus concernent les suspensions modérément concentrées. Cependant, les suspensions très diluées $\phi \ll 1$, ou au contraire, très concentrées $\phi \approx \phi_c$ font apparaître des régimes de pincement bien particuliers et qui ont fait l'objet d'encore moins de travaux. Nous présentons les principales observations faites à leur sujet.

$\phi \approx \phi_c$: Seules les expériences réalisées dans [64] s'attardent sur le détachement de gouttes de suspensions de billes proches de la fraction volumique critique ϕ_c . Pour des billes de typiquement $20 \mu\text{m}$ à $900 \mu\text{m}$ suspendues dans des fluides de viscosités $10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ à $10^{-1} \text{Pa} \cdot \text{s}$, l'amincissement observé, proche de t_0 suit une loi analogue à la loi 1.7 à un ratio h_0/d près (*i.e.* $h_{\min} \sim h_0/d[\sigma(t_0 - t)/\rho]^{1/3}$). Ce ratio est imputé aux effets capillaires liés à la déformation de l'interface par les billes. Il est cependant particulièrement surprenant que les effets visqueux puissent être négligés alors que les concentrations ($\simeq 60\%$) sont proches ou au delà de ϕ_c et que le nombre de Ohnesorge basé sur une viscosité effective d'une suspension de billes dans l'eau à $\phi = 57\%$ est déjà d'ordre 1.

$\phi \ll 1$: Cette limite concerne les cas où les billes n'interagissent qu'hydrodynamiquement et dans [55] et [91] est identifié un régime très bref pour $h \lesssim d$ où le fluide pur situé entre deux particules se pince 10% plus vite que prévu par la loi d'amincissement visqueuse 1.7. Cette accélération est corrélée à une augmentation locale de la courbure de la colonne liquide située entre deux particules en fin de pincement.

1.3.3 Tension de surface et rôle du mouillage

Toutes les études réalisées sur le pincement capillaire d'une suspension ont confirmé que l'approche effective est pertinente, du moins pour décrire les premiers instants de l'amincissement. Cependant, dans tous les cas, la tension de surface du liquide en présence

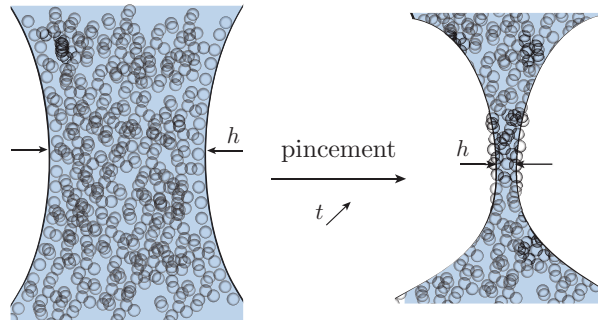


FIGURE 1.15 – Lors du pincement d’un pont capillaire, les contraintes particulières $\sim \sigma/h$ dues à l’écoulement initialement trop faible pour faire dépasser des billes mouillantes à l’interface (à gauche), deviennent suffisantes (à droite) pour les faire protruder et créer des rugosités à l’interface.

de billes est prise comme étant celle du liquide pur. De plus, la déviation au régime effectif ne semble, elle, pas clarifiée. Résulte-t-elle de la rhéologie de la suspension confinée ou bien d’une contrainte supplémentaire à l’échelle des billes en surface? ou encore d’une combinaison des deux? Il s’agit d’un pan qui n’a pas été abordé (hormis l’approche de Miskin et Jaeger [64] dans le cas très concentré). Nous pouvons néanmoins avancer des pistes quant aux éventuels effets de billes placées à une interface liquide.

La présence de particules à l’interface dépend de leur mouillage par le liquide suspendant et des éventuels contraintes exercées par les particules des profondeurs sur celles qui sont les plus proches de l’interface. Pour une configuration statique et une concentration inférieure à ϕ_c , les contraintes particulières relaxent et seul le mouillage joue. Inversement, pour des particules complètement mouillantes, le mouillage ne joue plus. Ainsi, pour des suspensions relativement concentrées ($0.2 \lesssim \phi \lesssim \phi_c$) de billes parfaitement mouillantes, des contacts entre billes se développent sous écoulement et deux échelles de déformations de l’interface du pincement cohabitent :

- les courbures macroscopiques du pont capillaire,
- les courbures des ménisques entre les billes situées à l’interface liquide.

Ces courbures ont des rôles très différents. Les petits ménisques inter-billes reprennent les contraintes particulières engendrées par l’écoulement. Ils ne contribuent pas à la courbure totale ou au gradient de pression total, responsable du mouvement, mais participent seulement à reprendre la répartition des contraintes entre les deux phases. À l’opposé, les courbures macroscopiques, engendrent des différences de pression de Laplace qui s’appliquent aux deux phases de la suspension (liquide+billes), motrices de l’écoulement.

Lorsque l’écoulement est dominé par les contraintes capillaires, d’ordre σ/h , celles-ci s’exercent aussi directement sur les particules. Tant que h est encore grand devant la taille d des billes, cette pression est négligeable devant la pression des ménisques inter-billes,

d'ordre σ/d . Dans ce cas ($h \gg d$), les billes sont donc confinées sous l'interface liquide. Elles ne peuvent déformer significativement l'interface que lorsque h s'est aminci jusqu'à l'échelle de d .

Par ailleurs, pour des suspensions concentrées ou des surfaces saturées, le réseau de particules peut reprendre une partie des contraintes tangentielles à l'interface et donc conduire à une tension de surface effective inférieure à celle du liquide pur et par suite à un comportement éventuellement différent (voir figure 1.16), à savoir un écoulement plus lent, voire stoppé. D'autre part, si les particules s'adsorbent, ou se désorbent (*i.e.*

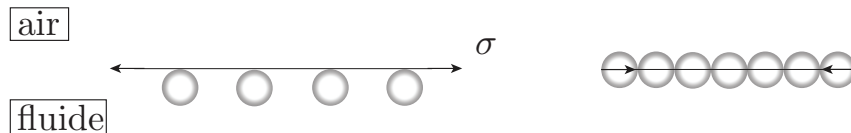


FIGURE 1.16 – Gauche : sans contacts entre billes à l'interface fluide/air, sa tension de surface σ reste inchangée. Droite : une partie des contraintes tangentielles à l'interface peut être reprise lorsque les billes sont au contact.

sont capturées ou relarguées par l'interface) pendant le pincement, (ce qui n'intervient pas spontanément, car $\sigma d^2 \gg k_B T$), le travail des forces de tension de surface est affecté et donc l'écoulement aussi.

1.3.4 Questions ouvertes

Comme nous l'avons vu, principalement deux régimes d'amincissement ont été identifiés au cours de la brisure d'un filament de suspension, révélant le caractère effectif et discret de tels systèmes. Toutefois, de nombreuses questions fondamentales et pratiques demeurent ouvertes.

Sur un évènement unique de fragmentation

- Quel est le mécanisme de la déviation au régime effectif et à quelle loi d'amincissement donne-t-il lieu ? et comment évolue le seuil de cette déviation avec d et ϕ ?
- Quel est l'influence du mouillage des particules ?
- Quelle est l'influence du rapport d'aspect des particules ?

Sur la fragmentation d'un jet

Ici, tout est beaucoup plus exploratoire. Toutes les questions sont ouvertes.

- Quels sont les différents régimes de fragmentation d'un jet de suspension ?
- Quelle est la longueur L d'un jet de suspension ?
- Quelles sont la taille et la forme des fragments ?
- Quelle est la variabilité de ces dimensions ?
- Comment dépendent-elles de la viscosité du liquide suspensif, de la forme et de la fraction volumique des particules ?

CHAPITRE 2

PINCEMENT D'UN PONT CAPILLAIRE

Avant de considérer dans les chapitres suivants la fragmentation à l'échelle d'un jet tout entier, nous nous intéressons ici à un évènement élémentaire de fragmentation en étudiant le pincement d'un pont capillaire.

Le but de l'étude est de comprendre la dynamique d'un pincement isolé. Il s'agit d'identifier l'échelle de temps du pincement et de déceler et caractériser les effets propres aux suspensions, notamment l'influence des effets de taille finie, en fonction de la fraction volumique en particules. Le pincement est étudié sur un dispositif contrôlé permettant une comparaison directe au cas newtonien. Afin d'obtenir des résultats généraux utilisables pour des processus de fragmentation plus complexes, nous nous concentrons sur le cas de particules iso-densité dans le régime où les effets inertiels sont négligeables.

L'étude a fait l'objet d'un article détaillé, publié dans le *Journal of Fluid Mechanics*. Ce chapitre est donc construit autour de l'article. Il introduit le dispositif et la démarche expérimentale (§2.1), puis résume les principaux résultats obtenus (§2.2), avant de reproduire l'intégralité de l'article (§2.3).

2.1 Méthodes expérimentales

La dynamique de pincement d'une colonne liquide peut être observée dans différentes situations, par exemple lors du détachement d'une goutte pendante ou la rupture d'un filament étiré dans un entrefer mobile. Bien qu'apparemment très similaires, ces configurations sont en fait différentes et présentent en pratiques des complications notoires. En effet, même pour des nombres de Ohnesorge élevés, le pincement d'une goutte pendante implique inévitablement des effets inertiels dus à l'accélération de la chute de la goutte par gravité, et les dispositifs à entrefer mobile font intervenir un nouveau paramètre, à savoir la vitesse d'écartement imposée à l'entrefer, qui est a priori décorrélée de la vitesse de pincement capillaire σ/η .

Pour s'affranchir de ces effets, nous avons donc opté pour la configuration d'un pont capillaire instable, formé transitoirement lors de la coalescence d'une goutte avec un bain. Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 2.1. Une goutte est maintenue pendante à l'extrémité d'une buse dans une configuration statique. Sous cette goutte, un bain de la même suspension est lentement approché jusqu'à ce que les deux volumes de suspension coalescent. Suite à la coalescence (qui n'est pas étudiée ici), se forme un pont capillaire instable entre la buse et le bain. L'étude présentée consiste à suivre l'évolution du pincement de ce pont capillaire jusqu'à sa rupture. Cette configuration offre plusieurs avantages. La taille initiale de la goutte étant toujours la même, les expériences sont reproductibles (voir figure 2.2b). De plus, la coalescence ayant lieu entre le sommet de la goutte et un bain plat (à l'échelle de la goutte), cette configuration produit un pincement axisymétrique facilement observable à l'aide d'une caméra. Au-delà de ces aspects pratiques, aucune vitesse extérieure n'est imposée et aucun effet d'inertie ne sera à considérer car nous prenons le soins de réaliser ces pincements avec des liquides suffisamment visqueux. Ceci fournit donc un cas d'écoulement universel, indépendant de la viscosité, dans le sens où celle-ci ne modifie que la durée de la dynamique sans que les formes successives que prennent l'écoulement et l'interface ne soient affectées.

En pratique, le protocole est le suivant : une suspension de billes lentement immergées puis mélangées manuellement dans un liquide visqueux (du PEG, de viscosité $2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$)



FIGURE 2.1 – Gauche : pont capillaire instable formé par la coalescence d'une goutte pendante de suspension avec un bain. Droite : schéma de l'expérience.

est centrifugée de manière à débarrasser la suspension des bulles introduites lors du mélange. La suspension préparée est ensuite pompée dans une seringue de 1 mL dont le diamètre interne est très proche du diamètre interne de la buse de manière à s'affranchir de tout effet de dilution. Nous avons par ailleurs vérifié que la fraction volumique de la suspension en sortie de seringue reste bien inchangée en extrudant une demie seringue de suspension et en pesant les billes et le liquide extrudés. La seringue est ensuite placée sur un support permettant de la laisser fixe sur toute la durée des expériences. Parallèlement, environ 10 mL de suspension, qui constitue le bain, est versée dans une coupelle disposée sous la seringue. Suite à quoi une goutte est lentement formée en sortie de buse jusqu'à obtenir une configuration de goutte pendante statique (voir figure 2.1a). Le bain de suspension est finalement approché de la goutte à l'aide d'une vis micrométrique jusqu'à ce qu'il coalesce avec la goutte. La coalescence forme un pont liquide dont le diamètre au col croît tout d'abord en temps jusqu'à atteindre un diamètre proche de celui de la buse. Dans un deuxième temps, le pont capillaire, instable, s'amincit jusqu'à se rompre, c'est-à-dire que le diamètre au col, h_{\min} , diminue jusqu'à s'annuler en temps fini, à $t = t_0$. Le pincement est capturé à l'aide d'une caméra. h_{\min} est mesuré sur les images à l'aide d'un code détectant les contours du pont capillaire à tout temps et dont un exemple est illustré sur la figure 2.2a.

Les billes et liquides sont choisis de façon à obtenir un écoulement visqueux et une suspension où les phases liquides et solides sont iso-denses. Nous avons donc opté pour des billes de polystyrène sphériques disponibles en lots de tailles très variées ($10 \mu\text{m} \ll d \ll 550 \mu\text{m}$) que nous avons tamisées pour obtenir une distribution de tailles aussi étroite que possible. Nous avons alors choisi des liquides de même densité et de viscosité suffisante pour que la dynamique de pincement soit visqueuse tout en s'assurant que les temps des expériences restent raisonnables. En pratique, nous avons choisi de faire la plupart des expériences avec du PEG (3.9 kg/mol poly(ethylene glycol-ran-propylene glycol)-monobutyl-ether fourni par Sigma-Aldrich), un fondu de polymères organiques complètement newtonien aux taux de déformation considérés. Pour varier le liquide et la viscosité, nous avons aussi utilisé des mélanges aqueux de Ucon (composé de polyalkylene glycol, 75-H 90 000 par Dow). Les propriétés sont listées dans la table 2.1.

Dans la limite présente d'un écoulement visqueux, la dynamique d'un liquide ne dépend plus que du nombre de Ohnesorge et du nombre de Bond selon

$$\frac{h_{\min}}{h_0} = \mathcal{F}(Oh, Bo) \quad (2.1)$$

En revanche, pour des suspensions iso-denses (Bo inchangé), on s'attend a priori à une dynamique dépendant de d , ϕ et θ (angle de mouillage liquide/billes) selon

$$\frac{h_{\min}}{h_0} = \mathcal{H}(Oh, Bo, \phi, \frac{h_0}{d}, \theta). \quad (2.2)$$

Ces différents paramètres ont été variés dans une large gamme allant de $10 \mu\text{m}$ à $550 \mu\text{m}$ et ϕ de 10% à 52% pour d et ϕ respectivement. L'angle de mouillage θ n'a été varié qu'une fois depuis $\theta \sim 0^\circ$, pour les billes telles que livrées, à $\theta \sim 90^\circ$ pour des billes que nous

Liquide	σ (mN.m ⁻¹)	η_0 (mPa.s)	ρ (kg.m ⁻³)
U100	39.3 ± 0.2	45 × 10 ³	1090
U80	40.2 ± 0.1	15 × 10 ³	1090
U50	44.4 ± 0.5	9.6 × 10 ²	1060
U30	50.5 ± 0.3	1.3 × 10 ²	1050
U20	52.8 ± 0.3	50	1020
U10	53.3 ± 0.5	10	1002
PEG	36 ± 0.1	2.4 × 10 ³	1050
PEG, $\phi = 30\%$, $d = 40 \mu\text{m}$	36.1 ± 0.2	-	-

TABLE 2.1 – Tension de surface et viscosité des liquides utilisés. Ux correspond à une solution aqueuse de $x\%$ en masse de Ucon. Les valeurs de σ sont mesurées par la méthode de la goutte pendante (moyenne sur trois mesures). Les densités sont mesurées au pycnomètre à une température ambiante de 23°C.

avons sprayées à l'aide d'un liquide hydrophobe. Ces billes peu mouillantes nécessitent un protocole de préparation spécifique afin d'éviter l'introduction d'air dans la suspension : elles sont d'abord immergées dans de l'éthanol par lequel elles sont bien mouillées, qui est ensuite remplacé par dilution par un mélange Ucon/Eau jusqu'à obtenir la concentration volumique voulue.

Afin de pouvoir déceler et mesurer ces dépendances à d , θ et ϕ , il est nécessaire d'obtenir une référence pour la dynamique newtonienne. La première étape est donc de calibrer l'expérience avec différents liquides newtoniens dont la viscosité est mesurée au rhéomètre (plan-plan ou cellule de Couette). La tension de surface est mesurée par la méthode de la goutte pendante. Toutes ces mesures sont reportées dans la table 2.1.

Une calibration de l'écoulement est réalisée (voir figure 2.2c) à l'aide de liquides newtoniens monophasiques de viscosité croissante afin de vérifier que l'écoulement est bien indépendant de la viscosité. En adimensionnant h_{\min} par h_0 et le temps par τ_η ($= \eta_0 h_0 / \sigma$, voir section 1.1.1), la vitesse d'amincissement devient indépendante du nombre de Ohnesorge, à condition qu'il soit suffisamment grand (*i.e.* $Oh \gg 1$). Remarquons cependant que les formes de courbes obtenues ne sont pas exactement superposées en tout début d'amincissement. Cela résulte du fait que pour ces différents liquides newtoniens, le nombre de Bond n'est pas exactement conservé. Il varie en effet entre 1.7 et 2.6. Dans la suite nous adoptons donc comme unique référence la courbe obtenue avec le PEG (qui est bien dans la limite visqueuse et a bien le même Bo que les suspensions). Nous ne supposons donc pas par la suite que le pincement suit une loi auto-similaire mais nous comparerons les vitesses d'amincissement des suspensions au cas du liquide newtonien visqueux ($Oh \gg 1$).

Si la plupart des résultats sont obtenus à l'aide du dispositif décrit ci-dessus, quelques mesures ont aussi été réalisées lors du détachement de gouttes pendantes, tout comme

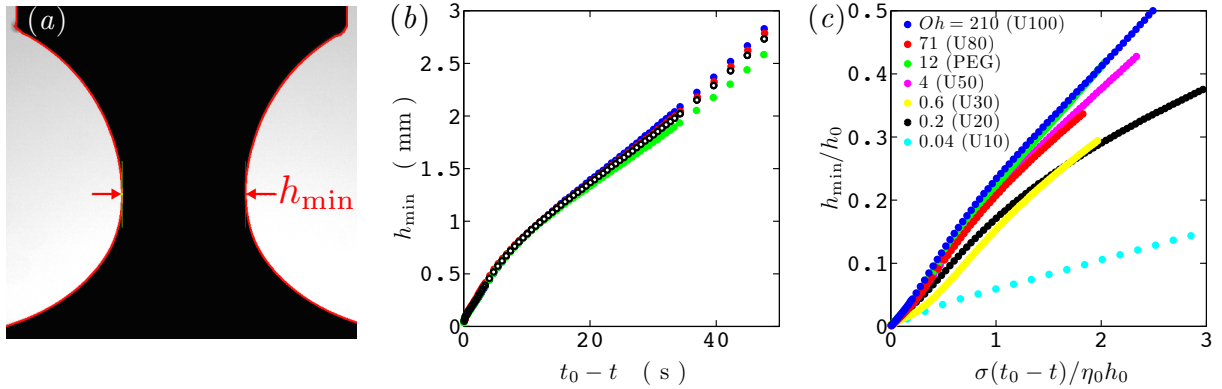


FIGURE 2.2 – a) Cliché d’un pont capillaire instable en cours de pincement ($h_0 = 3.95$ mm, $\phi = 48\%$, $\eta_0 = 2.4$ Pa \cdot s et $d = 10$ μ m). Le pont capillaire est rétro-éclairé et apparaît donc noir sur l’image. b) Évolution temporelle du pincement d’un pont capillaire de suspension. Trois répétitions sont représentées (cercles pleins) ainsi que la moyenne (cercles noirs). c) Évolution temporelle du diamètre minimal du pont capillaire, adimensionné par le diamètre de la buse. Le temps est lui aussi adimensionné et $0.01 \leq \eta_0 \leq 40$ Pa \cdot s.

dans les études de Bonnoit et *al.* [9] ou Bertrant et *al.* [7]. Cette configuration est uniquement utilisée pour mesurer la viscosité effective au début de la dynamique, avant que les effets inertiels ne deviennent importants. Cela permet de comparer les viscosités effectives mesurées dans les deux configurations, toutes choses égales par ailleurs (même liquide suspendant, mêmes billes et même buse).

2.2 Résumé des résultats

Avant même de quantifier la dynamique de pincement, de nombreuses informations qualitatives peuvent être obtenues de l’observation comparative des différentes suspensions et du cas newtonien.

La figure 2.3 montre l’amincissement d’un pont capillaire de liquide pur (PEG) et d’un pont capillaire d’une suspension de billes de 80 μ m suspendues dans du PEG à une fraction volumique de 50%. Les images montrent les deux ponts capillaires sur la même gamme de diamètre minimal. Ils ont le même diamètre minimal sur la première et la dernière image (*i* et *v*), et les images intermédiaires (*ii* à *iv*) sont espacées uniformément dans l’intervalle. Cependant, jusqu’aux images (*iv*), où les deux ponts capillaires ont aussi le même h_{\min} , la suspension a passé environ 60 fois plus de temps à s’amincir que le PEG. L’ajout de billes a donc pour première conséquence de ralentir fortement le processus de pincement, comme attendu pour un fluide newtonien 60 fois plus visqueux que le PEG. Néanmoins, même si les ponts capillaires sont de même diamètre sur les images (*iv*), le pont est nettement moins élancé et le pincement est plus localisé dans le cas d’une suspension. De manière similaire, notons que les taux d’amincissement des deux ponts capillaires ne sont pas simplement proportionnels entre eux durant tout le processus de pincement. Les images (*iii*) et (*iv*) mettent clairement en évidence que relativement au temps total de pincement, l’amincissement proche du détachement est bien plus rapide

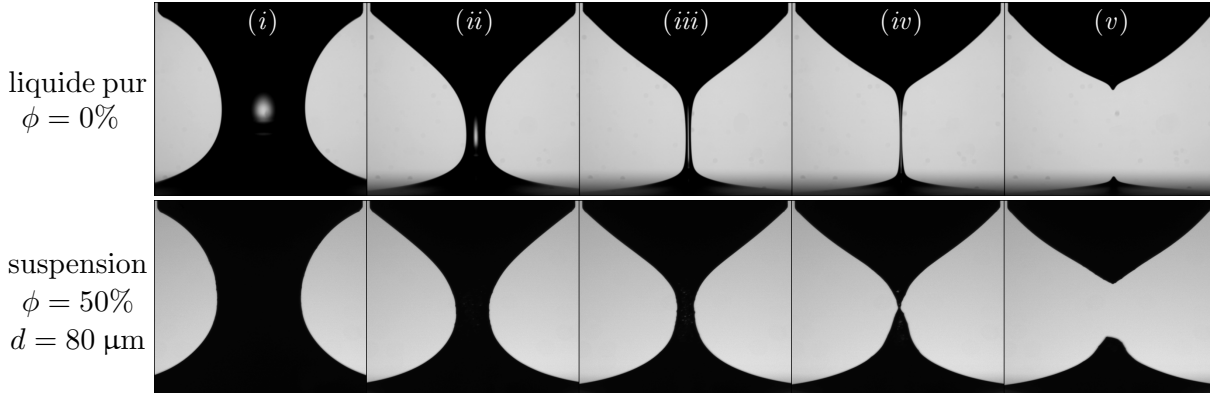


FIGURE 2.3 – Comparaison de la dynamique de pincement d'un pont capillaire pour (haut) du PEG pur et (bas) une suspension de billes de $80\ \mu\text{m}$ suspendues dans du PEG à $\phi = 50\%$. Sur la première image (i) ainsi que sur l'avant dernière (iv) de chacune des séquences, les diamètres minimaux des ponts capillaires sont identiques. En haut, $t_0 - t = 600, 100, 25, 0.66$ et -25 ms, de gauche à droite respectivement. En bas, tous les temps sont 60 fois plus longs.

pour une suspension que pour un liquide newtonien monophasique.

De manière plus systématique et quantitative, les expériences réalisées sur le pincement de suspensions de billes de $10\ \mu\text{m}$ dans du PEG sont présentées sur la figure 2.4. Entre une suspension à $\phi = 20\%$ et $\phi = 52\%$, le temps de pincement diffère d'environ deux ordres de grandeur. Pour caractériser à la fois le ralentissement du pincement avec l'augmentation de ϕ et les déviations au cas newtonien, nous avons comparé l'évolution du diamètre minimal à celle du cas newtonien. La figure 2.4a montre l'évolution de h_{\min} en fonction du temps adimensionné

$$\frac{\sigma t}{\eta_0 h_0} \times \frac{\dot{h}_{\min}|_{\phi=0}}{\dot{h}_{\min}}, \quad (2.3)$$

formé à partir du ratio du taux de pincement initial de la suspension, \dot{h}_{\min} , à celui du liquide suspendant, $\dot{h}_{\min}|_{\phi=0}$. Deux constats importants peuvent être fait :

- Premièrement, les données des suspensions se superposent très bien jusqu'à des diamètres $h_{\min} \simeq 0.2h_0$. Le nombre de Bond et la tension de surface étant conservés entre le liquide pur et les différentes suspensions, le ratio $\dot{h}_{\min}|_{\phi=0}/\dot{h}_{\min}$ donne donc, puisque cet écoulement est réalisé dans la limite de Stokes, directement accès à une estimation de la viscosité effective relative

$$\frac{\eta_e}{\eta_0} \equiv \frac{\dot{h}_{\min}|_{\phi=0}}{\dot{h}_{\min}} \quad (2.4)$$

pour chaque fraction volumique. Ce régime d'amincissement sera nommé régime de fluide visqueux effectif.

- Deuxièmement, en deçà d'une valeur de h_{\min} de plus en plus faible à mesure que ϕ décroît, les vitesses d'amincissement des suspensions dévient systématiquement du régime d'amincissement de fluide visqueux effectif.

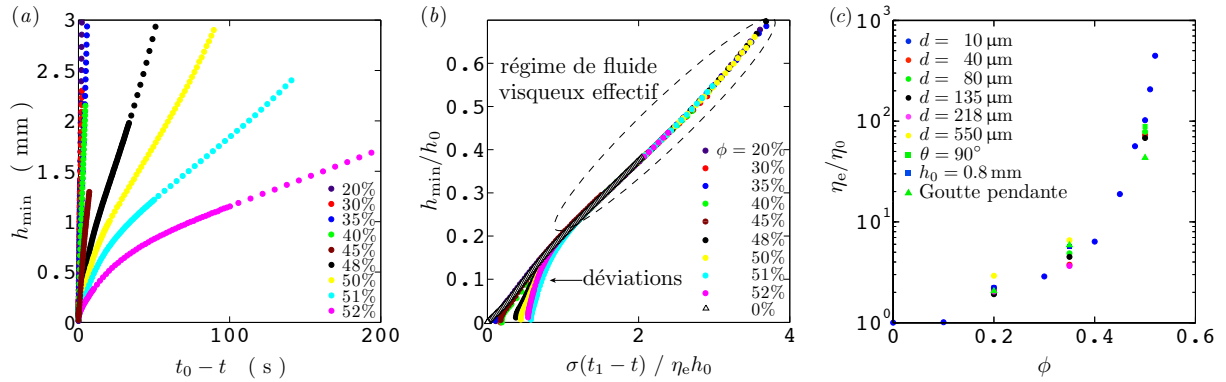


FIGURE 2.4 – a) Évolution du diamètre minimal du pont capillaire pour des billes de $10\ \mu\text{m}$ suspendues dans du PEG à différentes fractions volumiques. b) Mêmes données, ajustées et décalées par un temps arbitraire t_1 de façon à les superposer lors des premiers instants du pincement au cas de référence du liquide pur. Pour chaque ϕ , l’ajustement définit une viscosité effective η_e relative à celle du liquide pur. c) Viscosité effective relative η_e/η_0 en fonction de la fraction volumique ϕ estimée pendant les premiers instants du pincement, à savoir $h_{\min} > h' \simeq 0.18h_0$. Sauf indication contraire, la configuration est celle d’un pont capillaire, le diamètre de la buse de $3.95\ \text{mm}$ et l’angle de contact $\theta \approx 0^\circ$.

De façon évidente, il s’agit de deux régimes différents. Nous allons donc les considérer successivement.

Le régime de fluide visqueux effectif

Dans ce régime, la forme du pont et l’évolution du diamètre minimal sont à tout instant identiques à celles du cas newtonien. Connaissant la référence newtonienne, la dynamique de pincement des suspensions y est donc entièrement décrite par la viscosité effective η_e . Sur la figure 2.4c sont rassemblées toutes les valeurs de η_e/η_0 déduites des vitesses de pincement pour chacune de ces suspensions. De $d = 10\ \mu\text{m}$ à $d = 550\ \mu\text{m}$, la viscosité relative est une fonction croissante de ϕ , qui fait apparaître comme dans le cas d’une suspension sous écoulement de cisaillement (voir section 1.2.1) une divergence pour une valeur bien particulière de ϕ . Pour la suspension de billes de polystyrène dans du PEG ($h_0 = 3.95\ \text{mm}$), qui constitue notre système de référence, cette valeur de ϕ_c se trouve être proche de 54%. Notons ici que cette valeur de ϕ_c est faible en comparaison de la valeur que l’on peut trouver dans les travaux de Boyer *et al.* [12], qui, sous cisaillement à pression imposée et pour une suspension similaire (PEG + billes de polystyrène de $580\ \mu\text{m}$) identifient une valeur de 58.5% à la divergence. Ce ne sont cependant pas les seules expériences mettant en évidence une valeur de ϕ_c relativement faible, on citera notamment les travaux de Blanc *et al.* [8] qui sous cisaillement constatent une divergence à $\phi = 54\%$. Une même valeur de ϕ_c n’est attendue que pour les mêmes états de surface des billes, ce qui n’est certainement pas le cas en pratique. Au-delà de leur état de surface, les billes de $10\ \mu\text{m}$ sont aussi plus sensibles aux interactions à distance, qui peuvent, comme nous l’avons évoqué au chapitre 1, modifier les interactions entre billes.

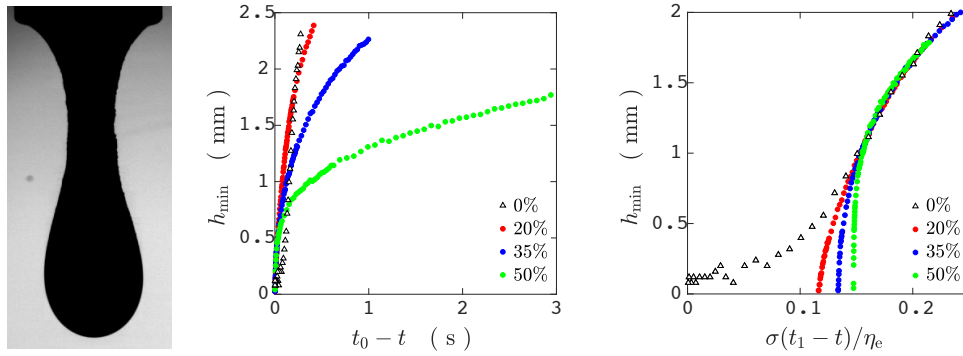


FIGURE 2.5 – Gauche : profil typique d'une goutte pendante de billes de $80 \mu\text{m}$ en suspension dans du PEG. Centre : évolution temporelle de h_{\min} pour des gouttes pendantes se détachant d'une buse. Les cercles pleins correspondent à des suspensions de billes de polystyrène de diamètre $d = 80 \mu\text{m}$ suspendues à diverses fractions volumiques. Les triangles correspondent eux au liquide pur (PEG). Droite : mêmes données, ajustées et décalées par un temps arbitraire t_1 de façon à les superposer lors des premiers instants du pincement au cas de référence du liquide pur (ϕ_0)

Afin de vérifier la robustesse de la mesure, la viscosité effective a aussi été mesurée en utilisant une buse plus petite ($h_0 = 0.8 \text{ mm}$) et sur la configuration d'une goutte pendante. Pour cette dernière configuration, l'évolution de $h_{\min}(t)$ est présentée sur la figure 2.5 et accompagnée de la superposition au liquide pur. Dans ces deux configurations, la valeur de la viscosité effective est du même ordre de grandeur que pour le système de référence. Un écart de 50% est constaté entre la viscosité mesurée en configuration de goutte pendante et de pont capillaire tandis que cet écart de viscosité est de 5% entre un pont capillaire formé à partir de deux tailles de buses différentes. La viscosité a aussi été mesurée indépendamment avec un rhéomètre plan-plan conventionnel. Les valeurs de viscosité sont très similaires jusqu'à une fraction volumique de 30%. Au-delà de $\phi = 30\%$, l'écart entre les valeurs de viscosités mesurées au rhéomètre et déduite du pincement d'un pont capillaire peut être de 50%, ceci associé à un comportement légèrement rhéofluidifiant, qui s'accroît à mesure que ϕ augmente. De même, l'expérience de pincement réalisée avec les billes partiellement mouillantes révèle que le taux de pincement ne diffère que de quelques 1/100 par rapport à celle réalisée avec des billes mouillantes. De ces mesures, nous pouvons déduire essentiellement trois informations :

- L'écart de 50% constaté entre la viscosité mesurée au rhéomètre et déduite du pincement d'un pont capillaire est très modéré si l'on considère que la viscosité mesurée à ces concentrations importantes est plusieurs dizaines de fois plus élevée que la viscosité du liquide pur. Les viscosités restent du même ordre de grandeur entre ces deux types d'écoulement, ceci montre que le rapport de Trouton n'est pas modifié pour une suspension de billes aux fractions volumiques explorées, comme c'est le cas pour un liquide newtonien. Or la présence de contraintes normales au sein de suspensions de particules sphériques, dont l'apparition est située aux alentours de $\phi = 30\%$ pourrait être une cause de la modification du rapport de Trouton. Cette mesure concorde cependant avec les simulations réalisées par Cheal et *al.* [17] et Seto et *al.* [83] qui ne

constatent pas de différence de rapport de Trouton pourvu que les billes ne soient pas parfaitement monodisperses, ce qui est le cas en pratique.

- Les expériences suggèrent de plus que, dans la gamme de mouillage explorée, la tension de surface effective de la suspension n'est pas modifiée en dynamique non plus, tant que le pont capillaire est grand devant d . Comme nous l'avons discuté dans la section 1.3.3, à cette échelle de taille là, la vitesse de pincement reste pilotée par la courbure principale du pont capillaire.

En résumé, les premiers instants du pincement d'un pont capillaire de suspension sont, de manière robuste, très bien décrits par un comportement de type milieu effectif, ce qui est en accord avec les mesures de Bonnoit et *al.* [9] ainsi que Bertrant et *al.* [7].

Déviaton au régime de fluide visqueux effectif

Comme nous l'avons vu, si l'approche de milieu effectif newtonien permet de bien décrire la dynamique du pont capillaire tant qu'il est épais, l'approche effective n'est plus valable lorsque le diamètre minimal du pont capillaire diminue et devient comparable au diamètre des billes. Peu de données existent sur cette déviation au régime effectif, dont l'origine n'est pas identifiée.

Une caractérisation systématique de cette déviation est donc effectuée afin d'isoler les mécanismes qui peuvent être à l'origine de ce comportement identifié en présence de billes.

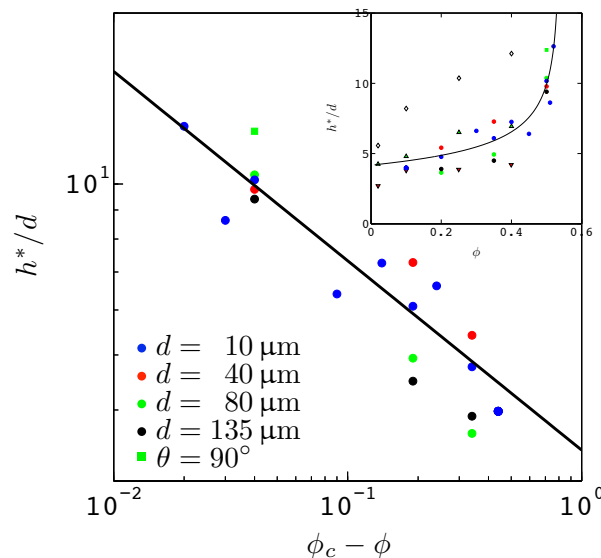


FIGURE 2.6 – Diamètre minimal h^* du pont capillaire à partir duquel la déviation au régime effectif est observée, tracé en fonction de $\phi_c - \phi$ pour $10 \leq d \leq 135 \mu\text{m}$. Les carrés verts ($\theta \approx 90^\circ$) correspondent aux billes peu mouillantes de $80 \mu\text{m}$. La ligne noire correspond à $h^*/d \sim (\phi_c - \phi)^{-1/3}$. Dans l'insert sont représentées les mêmes données, associées aux données extraites de Mathues et *al.* [60] (\diamond billes de PMMA de $3 \mu\text{m}$, \triangle billes de polystyrène de $10 \mu\text{m}$, ∇ billes de polystyrène de $20 \mu\text{m}$).

Pour cela, la déviation au régime de fluide visqueux effectif (illustrée sur la figure 2.4(b)) est défini comme le diamètre h^* à partir duquel le taux d'amincissement \dot{h}_{\min} est accru de 30% par rapport à sa valeur constante avant la déviation.

Les diamètres critiques h^* , déterminés pour différents diamètres de billes ($10 \mu\text{m} \leq d \leq 135 \mu\text{m}$) et différentes fractions volumiques ($0.10 \leq \phi \leq 0.52$), sont reportés sur la figure 2.6. À fraction volumique fixée, le diamètre critique adimensionné est proportionnel à d , tant que les billes sont suffisamment petites ($d \lesssim 135 \mu\text{m}$). Au-delà de $d = 135 \mu\text{m}$, la taille des billes devient du même ordre de grandeur que h_0 et les effets discrets sont sondés directement depuis le début du pincement, c'est-à-dire sur une géométrie et un écoulement différents. En effet, à même valeur de h_{\min}/d , le pont capillaire est très courbé pour les plus grosses billes tandis qu'il est très allongé pour les plus petites billes. Le diamètre critique est aussi une fonction croissante de la fraction volumique et semble diverger à mesure que ϕ s'approche de ϕ_c . Expérimentalement, nous trouvons que la divergence est décrite par

$$\frac{h^*}{d} \sim (\phi_c - \phi)^{-1/3}, \quad (2.5)$$

qui semble aussi bien décrire les données de Mathues *et al.* [60], mises à part celles obtenues pour leurs plus petites billes de $3 \mu\text{m}$ qui sont certainement beaucoup plus sensibles aux interactions à distance. Nous ne sommes pas capable d'isoler le mécanisme responsable de cette déviation et de l'accélération du pincement qui en résulte, mais trois mécanismes différents expliquant la dépendance en d peuvent être proposés :

- L'accélération peut refléter le moment où la taille typique du système (h^*) devient comparable à la longueur de corrélation des mouvements fluctuants des particules au sein de la suspension déformée. Cette longueur est proportionnelle à d et croît avec ϕ pour diverger comme $(\phi_c - \phi)^{-0.6}$ [68] ou $(\phi_c - \phi)^{-0.43}$ [90] selon les simulations. Le pincement serait alors accéléré pour $h_{\min} < h^*$ parce que dans ce cas, le mouvement des billes serait facilité dans toute la section par la grande mobilité de l'air alentour.
- Les corrugations de l'interface, dont nous avons pu estimer l'évolution, comme présenté sur la figure 2.7, pourraient aussi être impliquées dans l'accélération du taux de pincement. L'estimation de l'amplitude δ des corrugations observées dans le cas d'une suspension de billes de $80 \mu\text{m}$ à $\phi = 50\%$ révèle que celle-ci croît continûment et devient comparable à d lorsque h_{\min} devient de l'ordre de quelques d . La phase solide protrudant l'interface peut être vue comme un volume de phase solide manquante au sein de la suspension dont la fraction volumique $\phi_{\text{dilué}} \approx \phi/(1 + \delta/h_{\min})^2$ diminue alors à mesure que h_{\min} décroît, ce qui aurait pour conséquence de réduire localement la viscosité et donc d'accélérer le pincement.
- Un autre mécanisme pouvant expliquer cette accélération provient de la différence de taux de cisaillement au sein de l'écoulement. Et pour cause, là où le pont capillaire est le plus mince (en h_{\min}), le taux de cisaillement, proportionnel à $-\dot{h}_{\min}/h_{\min}$, est aussi le plus élevé, ce qui tend à faire migrer les particules depuis le col vers les régions périphériques du pont capillaire et donc à diluer le col d'autant plus que son diamètre diminue. Là encore, la migration impliquant un écoulement relatif entre le liquide et les billes, celle-ci ne peut avoir lieu que lorsque la taille de la zone déformée, h_{\min} , devient de l'ordre de la taille des pores entre les billes que doit parcourir le liquide, à savoir

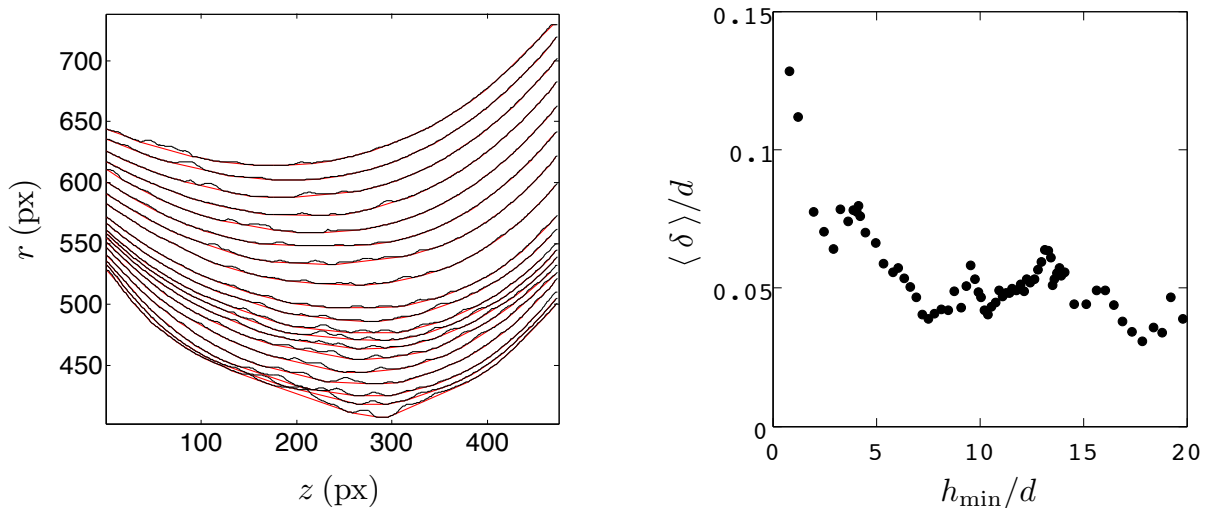


FIGURE 2.7 – Gauche : contours d’un des deux bords d’un pont capillaire (—) à différents instants avant sa rupture ($d = 80 \mu\text{m}$, $\phi = 50\%$, $\eta_0 = 2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$). Sur ces contours sont superposées leurs enveloppes convexes respectives (—) qui laissent apparaître les corrugations de l’interface. Droite : évolution de la corrugation moyenne $\langle \delta \rangle$ calculée à partir des enveloppes de gauche et adimensionnée par d (\bullet). δ est défini comme la distance entre le contour du pont capillaire et l’enveloppe convexe. Seuls les $\delta > 0.5 \text{ px}$ sont comptés.

d . Nous avons essayé de mettre en évidence une telle dilution du col en particules en visualisant l’écoulement relatif de liquide à l’aide de traceurs dispersés dans la phase liquide, mais sur plusieurs dizaines de traceurs, et certainement parce que la dilution est très progressive, aucune différence de vitesse notable n’a pu être détectée.

Dans ce résumé, nous n’avons pas présentés tous les résultats obtenus sur les ponts capillaires, mais seulement les principaux qui seront utilisés dans la suite de cette thèse. On trouvera dans l’article de plus amples détails sur le temps passé dans le régime d’amincissement dominé par les effets discrets ainsi que sur l’évolution de h_{\min} suite à la déviation du régime effectif newtonien jusqu’aux derniers instants où le taux de pincement devient de l’ordre de celui du liquide pur ($\phi = 0$), comme déjà rapporté par Mathues et *al.* [60] ou Lindner et *al.* [55]. De plus, nous avons observé que la dépendance de h^*/d à ϕ devient caduque pour des diamètres de billes supérieurs ou égaux à $218 \mu\text{m}$, qui deviennent non négligeables devant le diamètre de la buse.

2.3 Article publié dans le *Journal of Fluid Mechanics*

Pinch-off of a viscous suspension thread

Joris Château¹, Élisabeth Guazzelli¹ and Henri Lhuissier^{1,†}

¹Aix Marseille Univ, CNRS, IUSTI, 13453 Marseille, France

(Received 17 July 2017; revised 1 February 2018; accepted 27 June 2018)

The pinch-off of a capillary thread is studied at large Ohnesorge number for non-Brownian, neutrally buoyant, mono-disperse, rigid, spherical particles suspended in a Newtonian liquid with viscosity η_0 and surface tension σ . Reproducible pinch-off dynamics is obtained by letting a drop coalesce with a bath. The bridge shape and time evolution of the neck diameter, h_{min} , are studied for varied particle size d , volume fraction ϕ and liquid contact angle θ . Two successive regimes are identified: (i) a first effective-viscous-fluid regime which only depends upon ϕ and (ii) a subsequent discrete regime, depending both on d and ϕ , in which the thinning localises at the neck and accelerates continuously. In the first regime, the suspension behaves as an effective viscous fluid and the dynamics is solely characterised by the effective viscosity of the suspension, $\eta_e \sim -\sigma/\dot{h}_{min}$, which agrees closely with the steady shear viscosity measured in a conventional rheometer and diverges as $(\phi_c - \phi)^{-2}$ at the same critical particle volume fraction, ϕ_c . For $\phi \gtrsim 35\%$, the thinning rate is found to increase by a factor of order one when the flow becomes purely extensional, suggesting non-Newtonian effects. The discrete regime is observed from a transition neck diameter, $h_{min} \equiv h^* \sim d(\phi_c - \phi)^{-1/3}$, down to $h_{min} \approx d$, where the thinning rate recovers the value obtained for the pure interstitial fluid, σ/η_0 , and lasts $t^* \sim \eta_e h^*/\sigma$.

Key words: breakup/coalescence, capillary flows, suspensions

1. Introduction

The fragmentation of particulate suspensions, i.e. the separation of liquids containing particles into disjointed droplets, is a generic phenomenon which is encountered in nature, e.g. vegetal spore dissemination (Ingold & Hadland 1959), as well as in engineering applications, e.g. ink-jet printing (Hoath *et al.* 2014), electrohydrodynamic printing (Korkut, Saville & Aksay 2008) and particle encapsulation (He 2008). As for any regular liquid, drop separation ultimately proceeds through the pinch-off of a thread of material. A physical description of complex fragmentation processes of suspensions (as, e.g. exhibited in figure 1) thus requires the understanding of the dynamics of a single pinch-off event. This is precisely the motivation for the present work.

For a single-phase Newtonian liquid, while gravity may initiate the motion, the pinch-off is ultimately controlled by the liquid surface tension σ . Close to the breakup singularity, the initial and boundary conditions become inconsequential and the

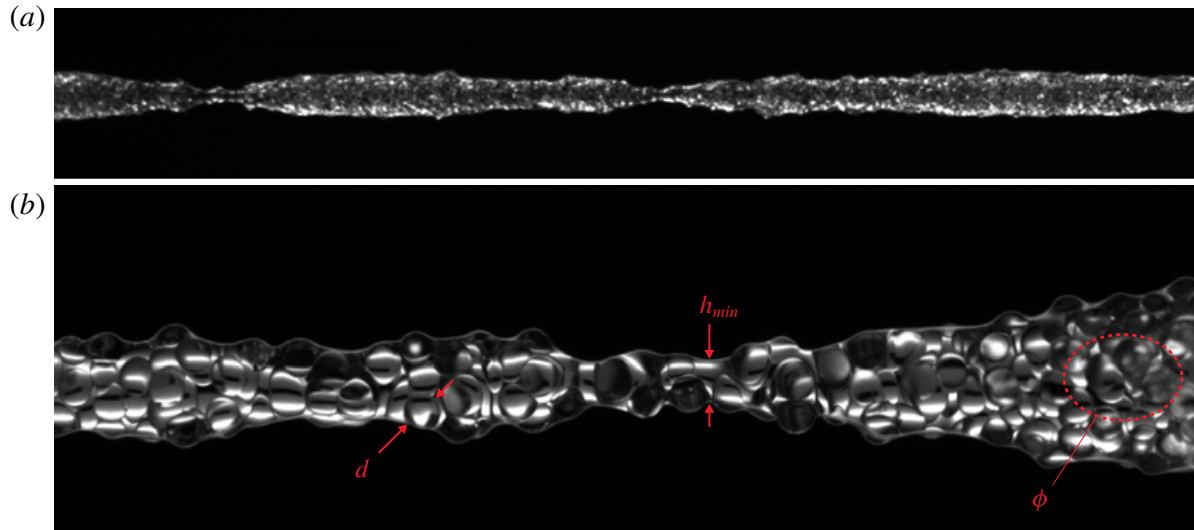


FIGURE 1. (Colour online) (a) An elongated thread of a viscous suspension of beads corrugates before it eventually fragments in disjointed drops. (b) Each break-up proceeds through the localised thinning of a neck connecting bulkier portions of the thread. The beads affect the flow in the pinching neck and distort the thread interface at their own scale d .

only length scale is the thinning neck diameter of the thread, h_{min} . The dynamics is then self-similar with respect to the time remaining until break-up, $t_0 - t$. Depending on the values of the Ohnesorge number that compares the viscous and inertial break-up time scales, $Oh = \eta_0 / \sqrt{\rho \sigma h_0}$ (where η_0 , ρ and h_0 are respectively the viscosity and density of the liquid and the initial diameter of the thread), different self-similar regimes emerge. For low Oh , the dynamics is governed by inertia and continuously accelerates, according to $h_{min} \propto [\sigma(t_0 - t)^2 / \rho]^{1/3}$ (Day, Hinch & Lister 1998), until viscosity eventually regularises the velocity (Eggers 1993). For large Oh , the dynamics is limited by viscosity. The minimum diameter, $h_{min} \propto \sigma(t_0 - t) / \eta_0$, thins at a constant rate typically equal to the capillary velocity (Papageorgiou 1995). This self-similar dynamics proceeds until inertia eventually comes into play. This latter stage, which has been referred to as the inertial–viscous regime, also exhibits a constant-rate thinning, typically twice as slow as that of the viscous regime, and is expected to occur at a typical neck diameter $h_{min} \propto h_0 Oh^{-3}$ (Eggers & Villermaux 2008). For practical purposes, a millimetre-sized thread with $Oh \gtrsim 10$ thus remains in the viscous regime over the whole observable range.

The situation is profoundly altered when particles are suspended in a liquid, i.e. in the case of a two-phase particulate suspension. As figure 1 illustrates, the solid particles introduce a new length scale, their diameter d . They are also expected to affect the rheological properties such as the viscosity as well as the capillary pressure through respectively two new parameters, the particle volume fraction of the suspension, ϕ , and the wetting angle between the particles and the suspending fluid, θ . The pinch-off problem has been first addressed by Furbank & Morris (2004, 2007) who examined the detachment of a drop of density-matched non-Brownian suspensions from a nozzle up to moderate concentrations ($0 \leq \phi \leq 40\%$). They identified an early stage ‘effective-fluid’ regime, where the suspension behaves as an effective Newtonian fluid, followed by an acceleration of the detachment dominated by discrete particle effects when the pinching localises. Bonnoit *et al.* (2012) continued

with this approach by studying drop detachment at the transition between the viscous and inertial–viscous regimes. They recovered the initial ‘effective-fluid’ regime but found that it was followed by an intermediate ‘interstitial-fluid’ regime where the pinch-off dynamics became independent of ϕ ($0 \leq \phi \leq 55\%$) and was similar to that of the pure suspending liquid even though particles were present in the neck. Closer to the pinch-off, they reported a subsequent ‘accelerated’ regime where the thinning was faster than that of the pure interstitial fluid. Attention has also been drawn to the opposite limits of extremely dilute and extremely concentrated suspensions. van Deen *et al.* (2013) documented dilute suspensions ($\phi \lesssim 5\%$) where isolated particles hastened the detachment. Conversely, Miskin & Jaeger (2012) reported the continuously accelerated pinch-off of an initially jammed suspension ($\phi \approx 60\%$) which was attributed to an inertial effect despite the fact that Oh could reach values larger than 10.

Besides pendant drops, the capillary break-up of an unstable liquid bridge has been considered by Mathues *et al.* (2015) as more amenable to detailed experimental investigations. The underlying assumption was that the final stage of break-up would not significantly differ from that of a pendant drop. Mathues *et al.* (2015) systematically studied the transition from the ‘effective-fluid’ to the ‘discrete-accelerated’ regimes ($2\% \leq \phi \leq 40\%$) and did not observe the ‘interstitial-fluid regime’ reported by Bonnoit *et al.* (2012) for pendant drops. They attributed the acceleration of the thinning to an average decrease in the viscosity owing to the stochastic fluctuations of the actual particle volume fraction in the small neck volume (McIlroy & Harlen 2014). Their mechanism relies on the relative dependence of the bulk viscosity to small changes in ϕ , which is known to diverge at the maximum volume fraction of a flowing suspension, $\phi_c (\approx 0.58)$. Interestingly, it suggests that discrete effects would dominate the whole pinch-off dynamics at large ϕ . However the stochastic fluctuations in ϕ invoked by McIlroy & Harlen (2014) neglected particle interactions. They are therefore irrelevant to most suspensions ($\phi \gtrsim 10\%$), where these interactions dominate the flow. More than anything else, the fate of large concentration suspensions is thus unclear.

It is also interesting to note the striking similarities of the accelerated and localised thinning of filaments of solid particulate suspensions with that of other non-Newtonian fluids. The pinching of shear-thinning liquids continuously accelerates and converges toward a double-cone shape at detachment (Doshi *et al.* 2003). A similar behaviour is also observed for emulsions and foams (Huisman, Friedman & Taborek 2012). This localisation of the stretching has the dramatic consequence that the global tension in the thread (e.g. the weight of the pendant drop) eventually overcomes capillary stresses and prescribes the last instants of the pinch-off, as realised by Coussot & Gaulard (2005) using yield-stress liquids. Such effects might also be significant for solid particulate suspensions.

To conclude on the existing literature regarding the pinch-off of suspension threads, while there is some evidence of an initial regime that can be described solely by effective-fluid arguments, the later stages of thinning and break-up are still elusive. The aim of the present work is to carry out extensive experiments to investigate the entire dynamics of the capillary thinning of non-Brownian suspensions consisting of neutrally buoyant and mono-disperse spherical particles suspended in a Newtonian liquid. We give special attention to the transition between the initial ‘effective-fluid regime’ and the final thinning regime. We also focus on the viscosity-controlled regime of break-up, i.e. the case of large Oh . This viscous limit is practically relevant not only to viscous suspending fluids but also to most concentrated suspension threads

owing to the significant increase in viscosity with increasing particle volume fraction. Indeed, at $\phi \simeq 50\%$, even such a low viscosity suspending liquid as water yields $Oh \approx 1$.

From dimensional analysis, the evolution of the neck diameter (normalised by the initial diameter h_0) at given boundary conditions is found to be a function \mathcal{H} of the dimensionless time and of four extra dimensionless parameters

$$\frac{h_{min}}{h_0} = \mathcal{H} \left(\frac{\sigma(t_0 - t)}{\eta_0 h_0}, Bo, \phi, \frac{d}{h_0}, \theta \right), \quad (1.1)$$

where the Bond number, $Bo = \rho g h_0^2 / \sigma$ (where g is the gravity), that measures the relative importance of surface tension and gravity forces, is the only relevant parameter for a single-phase viscous liquid. Our present goal is to determine the time scale of the pinch-off, the onset of its acceleration (relative to the effective-viscous-fluid regime), and its dependence on the suspension parameters d , ϕ and θ (i.e. to determine the function \mathcal{H}). We thus conduct experiments on an isolated pinch-off event while maintaining a fixed Bond number to observe the sole influence of ϕ , d and θ . To that extent, we choose the configuration of an unstable capillary bridge formed by letting a pendant drop coalesce with a bath. This configuration which is detailed in § 2.2 is particularly interesting owing to its experimental amenability but also because it does not introduce any additional velocity in the problem unlike the pendant drop configuration. Together with choosing a sufficiently viscous suspending liquid, this ensures that, besides its time scale $\sim \eta_0 h_0 / \sigma$, the overall dynamics does not depend upon the liquid viscosity. We also conduct additional investigations using a pendant drop in order to examine the influence of initial and boundary conditions on the pinch-off event. We focus on the semi-dilute to concentrated suspension range ($10\% \leq \phi \leq 52\%$) for which particles are significantly interacting with each other but the suspension still flows.

The presentation of the study is as follows. Details of the experimental apparatus and procedure are given in § 2. The experimental results are presented in § 3. General observations and the two pinch-off regimes are first introduced in § 3.1. The detailed analysis of these successive regimes is then provided in §§ 3.2 and 3.3. Conclusions are drawn in § 4.

2. Experimental set-up

2.1. Particles and fluids

Different batches of smooth, mono-disperse, spherical, polystyrene particles (Dynoseeds TS manufactured by Microbeads) with density $\rho = 1050 \text{ kg m}^{-3}$ and diameters, d , ranging from 10 to 550 μm were used in the experiments (the relative standard deviation in d ranged from 1 to 8% (see table 1) and visual analysis of the particle surface indicated that the roughness was much smaller than the particle size).

The suspending fluids were chosen (i) to be sufficiently viscous to ensure a large Oh over the whole range of ϕ and (ii) to match the density of the polystyrene spheres to avoid the sedimentation effect and to maintain a fixed Bo , see table 2. In order to vary the wetting contact angle θ , two different Newtonian fluids were used (i) poly(ethylene glycol-ran-propylene glycol)-monobutyl-ether (PEG), a polymer melt with an average molecular weight of 3900 g mol^{-1} , with surface tension $\sigma = 36 \text{ mN m}^{-1}$ and viscosity $\eta_0 = 2.4 \text{ Pa s}$ and (ii) a 30.5 wt. % aqueous solution of Ucon oil, a commercial lubricant (Ucon 75-H, 90 000) composed of Polyalkylene

d (μm)	10.1 ± 0.3	40 ± 1	80 ± 4	80 ± 4	135 ± 11	218 ± 3	550 ± 24
Surface	bare	bare	bare	coated	bare	bare	bare
θ_a (deg.)	—	—	29 ± 2	100 ± 2	32 ± 3	23 ± 2	61 ± 2
θ_r (deg.)	—	—	13 ± 2	64 ± 2	12 ± 2	18 ± 2	27 ± 2
θ (deg.)	—	—	21 ± 8	82 ± 27	22 ± 10	21 ± 2	44 ± 17

TABLE 1. Particle characteristics.

Fluid	ρ (kg m^{-3})	σ (mN m^{-1})	η_0 (Pa s)
PEG	1050 ± 1	36.0 ± 0.1	2.4 ± 0.1
Ucon (30.5 %wt)	1050 ± 1	50.5 ± 0.3	0.130 ± 0.002

TABLE 2. Fluid characteristics.

glycol, with surface tension $\sigma = 50.5 \text{ mN m}^{-1}$ and viscosity $\eta_0 = 130 \text{ mPa s}$. The surface tensions and viscosities were measured by fitting the shape of static pendant drops and by using a rheometer (Anton Paar MCR 501) with a cone–plate geometry at the temperature of the experiments (23°C), respectively. The fluid viscosities were found to be constant over the whole range of applied shear rates (10^{-2} – 10^2 s^{-1}) which covered the typical macroscopic shear rates $-\dot{h}_{min}/h_{min}$ of the pinch-offs with two additional higher decades. This insured that the suspending liquid could be considered as Newtonian, even in the case of concentrated suspensions where the local shear rate between the particle largely exceeds the applied macroscopic shear rate (Souzy *et al.* 2017).

Most of the experiments were conducted with wetted particles, i.e. typically $\theta \lesssim 20^\circ$ as can be seen in table 1, using bare (i.e. as delivered) polystyrene beads suspended in PEG. Note that contact-angle measurements were not possible for particles smaller than $d = 80 \mu\text{m}$ and the values of θ were assumed to be similar to those found for larger sizes since the beads are made with the same polystyrene material. It should be stressed that the addition of particles did not affect the surface tension as checked by measuring the shape of pendant suspension drops. Suspensions of partially non-wetting particles were also obtained by using polystyrene beads of size $d = 80 \mu\text{m}$ coated with a silicon-based commercial waterproof spray (Trigano ‘impermeabilisant incolore’) suspended in the Ucon solution. This resulted in an averaged contact angle $\theta = 82^\circ$ as measured at the meniscus of a single bead successively submersed and withdrawn from a pool of Ucon solution (the advancing and receding contact angles were 100° and 64° , respectively).

A great care was taken in preparing the suspensions to avoid air entrapment in the highly viscous suspending fluids. For $d \leq 40 \mu\text{m}$, the desired quantity of spheres were first mixed to the suspending fluid with a spatula in a beaker. The suspensions were then centrifuged at $2000g$ for one to two minutes to remove air bubbles without any detection of significant particle sedimentation or creaming. For $d > 40 \mu\text{m}$, the particles were gently deposited on the fluid interface and let there until they were completely soaked by the liquid. They were further mixed by slowly rotating the beaker at an angle. To immerse the partially non-wetting (coated) spheres in the Ucon solution, a more stringent protocol was designed. The spheres were first immersed in ethanol which completely wetted them before replacing the ethanol by the Ucon solution. To avoid any air trapping during the process, the beads together with a

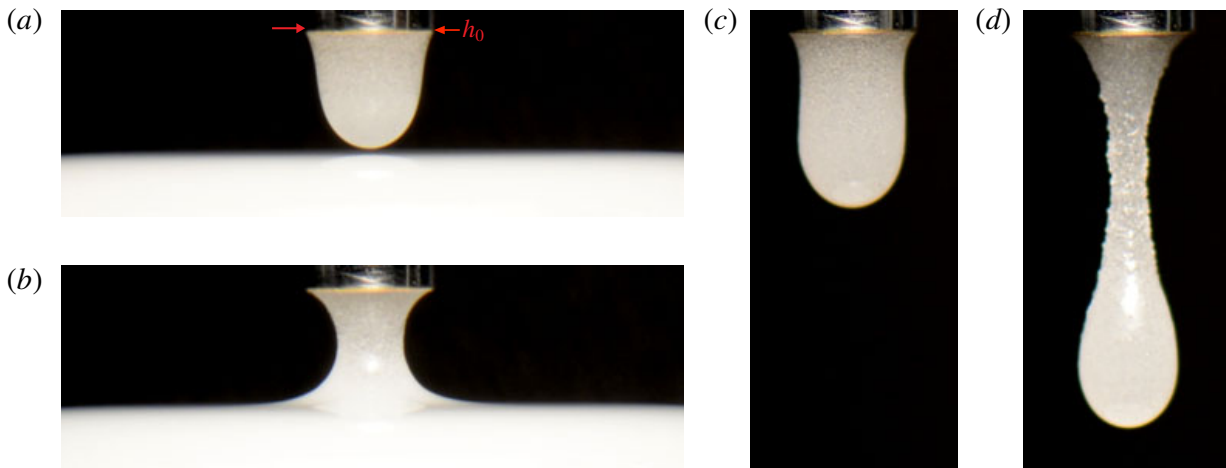


FIGURE 2. (Colour online) The two studied pinch-off configurations. (a,b) Pinch-off of an unstable capillary bridge formed by letting a pendant drop coalesce with a bath. (c,d) Pinch-off of a thread that is stretched behind a pending drop. The nozzle outer diameter is $h_0 = 4.39$ mm in both cases and the suspensions consist of polystyrene spheres having a diameter $d = 80$ μm suspended in PEG at $\phi \approx 50\%$.

magnet were positioned in a syringe body the two openings of which were obstructed by grids to retain the particles within the syringe tube. Ethanol was first injected to immerse the spheres and a large quantity of Ucon solution was subsequently and slowly pushed through the syringe until all the ethanol was washed. The suspension was finally mixed with the help of the embedded magnet.

The particle concentration was varied with ϕ ranging between 0 and 52%. For each ϕ , the suspension shear viscosity was measured with a rheometer (Anton Paar MCR 501) in the range of deformation rates $-\dot{h}_{min}/h_{min}$ imposed by the pinch-off dynamics. To avoid shear-induced migration during the measurements (Morris & Boulay 1999), a plate–plate configuration was chosen with wall roughness of the order of d and gap size larger than $20d$. For $0 \leq \phi \leq 40\%$, the shear viscosity was found to be shear rate independent. For $\phi \geq 45\%$, a small, systematic, shear thinning was observed and was found to be independent of the shear history, of the cell geometry (plate–plate or cone–plate), of the particle size, of the wall roughness, and of whether a curved meniscus of suspension was let at the plate periphery or not. The magnitude of this shear thinning was found to increase with increasing ϕ and to reach a typical twofold decrease in viscosity over two decades of shear rate at $\phi = 52\%$. Similar shear-thinning behaviour has been previously reported for concentrated non-colloidal suspensions (Zarraga, Hill & Leighton 2000) and is not well understood.

2.2. Apparatus and procedure

Most of the pinch-off experiments were performed with an unstable capillary bridge configuration as shown in figure 2(a,b). They consisted in letting a pendant drop having a controlled size coalesce with a bath of the same suspension positioned below. The coalescence stretched the bridge which eventually pinched-off in a reproducible manner. This bridge configuration was selected because it confines the whole dynamics to the same region of space, thus facilitating the high-resolution observation of the late instants of the pinch-off. The coalescence-induced initiation of the dynamics was chosen because it naturally preserves the axial symmetry and does not introduce any additional velocity in the problem (for a viscous Newtonian liquid,

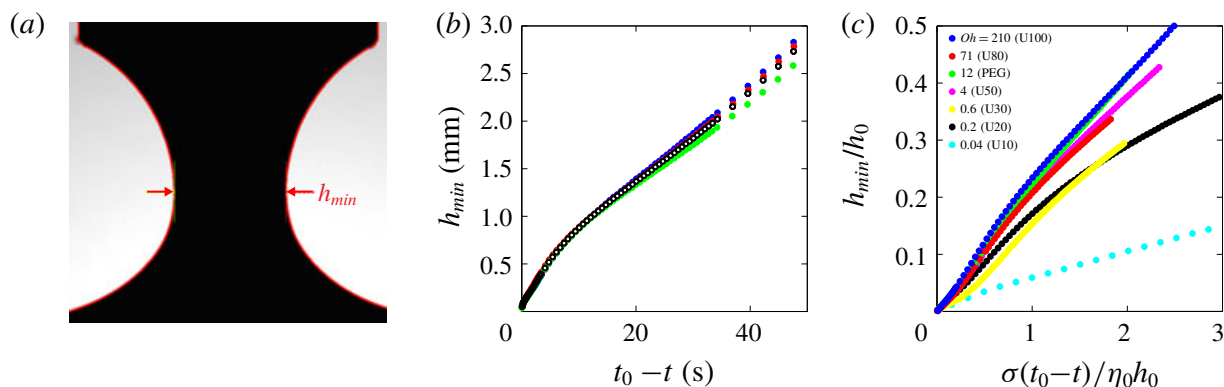


FIGURE 3. (Colour online) (a) Snapshot of a pinching suspension capillary bridge ($h_0 = 4.39$ mm, $\phi = 48\%$ and $d = 10$ μm), see also the online supplementary movies available at <https://doi.org/10.1017/jfm.2018.530>. The bridge appears as black on the bright background. A red line highlights its contour. (b) Typical time evolution of the minimal diameter, h_{min} , in which the break-up time, t_0 , is used as a temporal reference. The filled circles correspond to three realisations of the same experiment. The open circles represent the average over these three realisations. (c) Dimensionless evolution of h_{min} for pure liquids (with viscosities η_0 ranging from 0.010 to 40 Pa s) showing the reference viscous dynamics reached in the limit of large Ohnesorge numbers (Ux stands for a x %wt aqueous solution of Ucon oil).

the time scale of the coalescence evolves together with that of the pinch-off). The drop was slowly extruded with a syringe through a stainless steel nozzle with an outer diameter h_0 until it reached a static shape with a controlled height. Two different nozzles with $h_0 = 4.39$ mm and $h_0 = 1$ mm (and inner diameters of respectively 3.95 mm and 0.8 mm) were used. We checked that the volume fraction ϕ of the drop was identical to that of the initially mixed suspension within an accuracy of 1% by weighting 10 test drops as well as the particles they contained. The flat horizontal surface of the suspension bath was subsequently approached with a precision translation stage until it touched the drop tip. To avoid Marangoni flows, both the bath and the drop were maintained at a constant temperature of 23 °C by air conditioning the laboratory room. This protocol ensured that the initial and boundary conditions were strictly identical between different realisations of the pinch-off and independent of ϕ .

The pinch-off dynamics was imaged by a high-speed camera coupled to a macroscopic lens resulting in a spatial resolution up to 3 μm per pixel and a temporal resolution up to 330 μs . Illumination was provided by a bright background which shone only during the exposure time of the camera to avoid any heating of the threads. A typical shadowgraph produced by this imaging system is shown in figure 3(a). The successive images were analysed by standard image processing functions (thresholding of the grey level image and contour detection) in order to determine the contour as well as the minimal apparent diameter of the thread h_{min} . For each suspension, experiments were repeated three times. Figure 3(b) shows typical evolutions of h_{min} obtained from three realisations of the pinch-off for bare polystyrene particles of size $d = 10$ μm suspended in PEG at $\phi = 48\%$. The break-up time t_0 is used as a temporal reference. While the relative variations in h_{min} for the three realisations are negligible for pure liquids, they were found to increase slightly for suspensions with increasing ϕ but always remained below 10% for all the particle

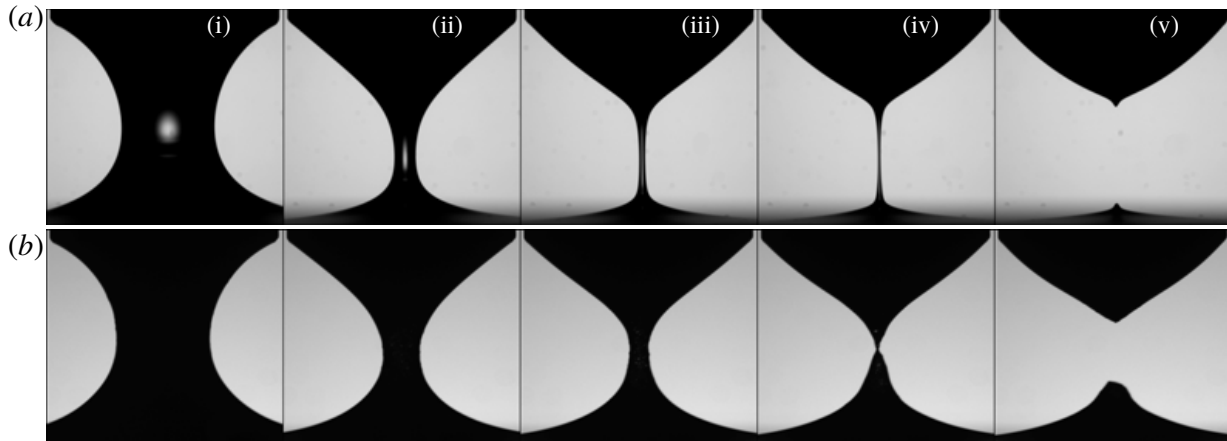


FIGURE 4. Comparison of the pinch-off dynamics of a capillary bridge for (a) pure PEG and (b) a suspension of 80 μm beads dispersed in PEG at $\phi = 50\%$. The bridges in the two sequences have the same neck diameter in both the first image (i) and the penultimate image (iv) which immediately precedes break-up. In (a), $t_0 - t = 600, 100, 25, 0.66$ and -25 ms, from left to right respectively, while in (b), all of the durations are 60 times longer.

sizes that were used. In the following, we only report the value of h_{min} obtained by averaging over three realisations.

In order to determine the influence of the suspension parameters on the dynamics, a viscous case of reference was needed. This was obtained by a calibration with pure liquids. Figure 3(c) shows the dimensionless time evolution of h_{min} using the viscous scaling $\eta_0 h_0 / \sigma$, for different liquids (PEG and from 10 to 100 %wt aqueous solutions of Ucon oil) with viscosity η_0 ranging from 0.010 to 40 Pa s. In the limit of large Oh , the curves collapse onto a single master curve, that of the Stokes regime, within an accuracy of typically 10 % due to the small variations in the surface tension, i.e. in Bond numbers between the different liquids. The curve obtained for pure PEG, which matches the Bond number of the suspensions, is taken as the reference curve for direct comparison with the PEG suspension experiments. It is important to stress that Oh is always larger than 1. For pure PEG, $Oh \approx 10$ and therefore is larger when adding particles. The aqueous solution of Ucon oil has been only used for concentrated suspensions ($\phi = 50\%$), for which the Ohnesorge number based on the effective viscosity of the suspension is also of order 10.

Additional experiments were undertaken with a pendant drop configuration as shown in figures 2(c) and 2(d). These experiments were meant to determine whether the break-up dynamics differs between the two (dripping or bridge) configurations. Pendant drops of suspensions were extruded through the same nozzles as those used in the bridge experiments. Similar imaging and data analysis were used.

3. Results

3.1. General observations and regimes

3.1.1. General observations

To illustrate how particles affect the pinch-off of a bridge, it is first insightful to compare the reference case of a pure viscous liquid to that of a suspension. Figure 4 shows the pinch-off dynamics for pure PEG and for a suspension of particles having a diameter $d = 80 \mu\text{m}$ suspended in the same liquid at $\phi = 50\%$. The two bridges have

the same minimal diameter in both the first (i) and the penultimate (iv) images, but the time intervals are 60 times larger for the suspension. This directly illustrates the first consequence of adding a large amount of particles to a viscous thread, which is simply to increase the time scale of the whole pinch-off process as previously noted by Furbank & Morris (2004, 2007). In the present case, since the Bond number is unchanged by the presence of the particles and the particles are mostly wetted by the liquid, this suggests that the suspension behaves overall as an effective fluid which is more viscous than the pure liquid by the same factor of 60. However, besides slowing down the overall dynamics, particles also alter the shape of the bridge as pinch-off proceeds. Indeed, although both bridges have the same minimal diameter in the images (iv), the bridge is clearly less slender and the pinching is more localised for the suspension case. Similarly, it must be noted that the rates of thinning of the two bridges are not simply proportional to each other over the whole pinching process. Images (iii) and (iv) clearly evidence that, relatively to the overall time scales of the pinch-off, the thinning close to break-up is faster for the suspension than for the pure liquid.

More systematically, figure 5 illustrates how the main alterations to the bridge shape during the pinch-off depend on the parameters of the suspension, specifically ϕ and d . Figure 5(a) compares the pinch-off process for a viscous liquid ($\phi = 0\%$) and for three suspensions of increasing volume fractions $\phi = 20, 35$ and 50% but having the same particle diameter $d = 80\ \mu\text{m}$. For each case, the bridge is shown at the same three values of the neck diameter, namely $h_{min} = 2, 0.6$ and $0.15\ \text{mm}$. Initially, there is no noticeable difference in the shape of the bridge with respect to that of a pure viscous liquid. However, as the thinning of the neck proceeds, a systematic deviation occurs, which becomes stronger with decreasing h_{min} and manifests earlier as ϕ is increased. For instance, at $h_{min} = 0.15\ \text{mm}$, the pure liquid bridge is slender and almost cylindrical, whereas for $\phi \gtrsim 20\%$ the bridge becomes corrugated owing to the formation of aggregates of particles, and for $\phi = 50\%$ the bridge adopts a double-cone shape, reminiscent of that reported for foams and emulsions (Huisman *et al.* 2012). These alterations of the bridge shape manifest similarly for both smaller and larger particles, albeit for different values of h_{min} . Figure 5(b) compares the case of particle diameters ranging from 10 to $550\ \mu\text{m}$ for the same particle volume fraction $\phi = 35\%$. At $h_{min} = 0.15\ \text{mm}$, the bridge shape is almost unaltered for $d = 10\ \mu\text{m}$, whereas it is dramatically modified into a double-cone shape for $d = 550\ \mu\text{m}$. At such moderate ϕ , the shape of the bridge is altered only once it has thinned down to a few particle sizes.

3.1.2. The different regimes of pinching

As anticipated in the above description, these conspicuous alterations of the bridge shape directly impact the rate of thinning of the bridge. All the trends described above can therefore be quantified by just focusing on the time evolution of the minimal diameter of the bridge h_{min} . This is illustrated in figure 6(a) for suspensions having the same diameter $d = 10\ \mu\text{m}$ but with ϕ ranging from 20 to 52% . As already noticed, the duration of the pinch-off increases significantly (by two orders of magnitude) between the pure liquid and $\phi = 52\%$. The precise influence of the particle volume fraction is thus better appreciated by representing each pinch-off dynamics in its own time scale. This is performed in figure 6(b) by defining for each ϕ an effective viscosity,

$$\eta_e \equiv \eta_0 \frac{49 \dot{h}_{min}|_{\phi=0}}{\dot{h}_{min}}, \quad (3.1)$$

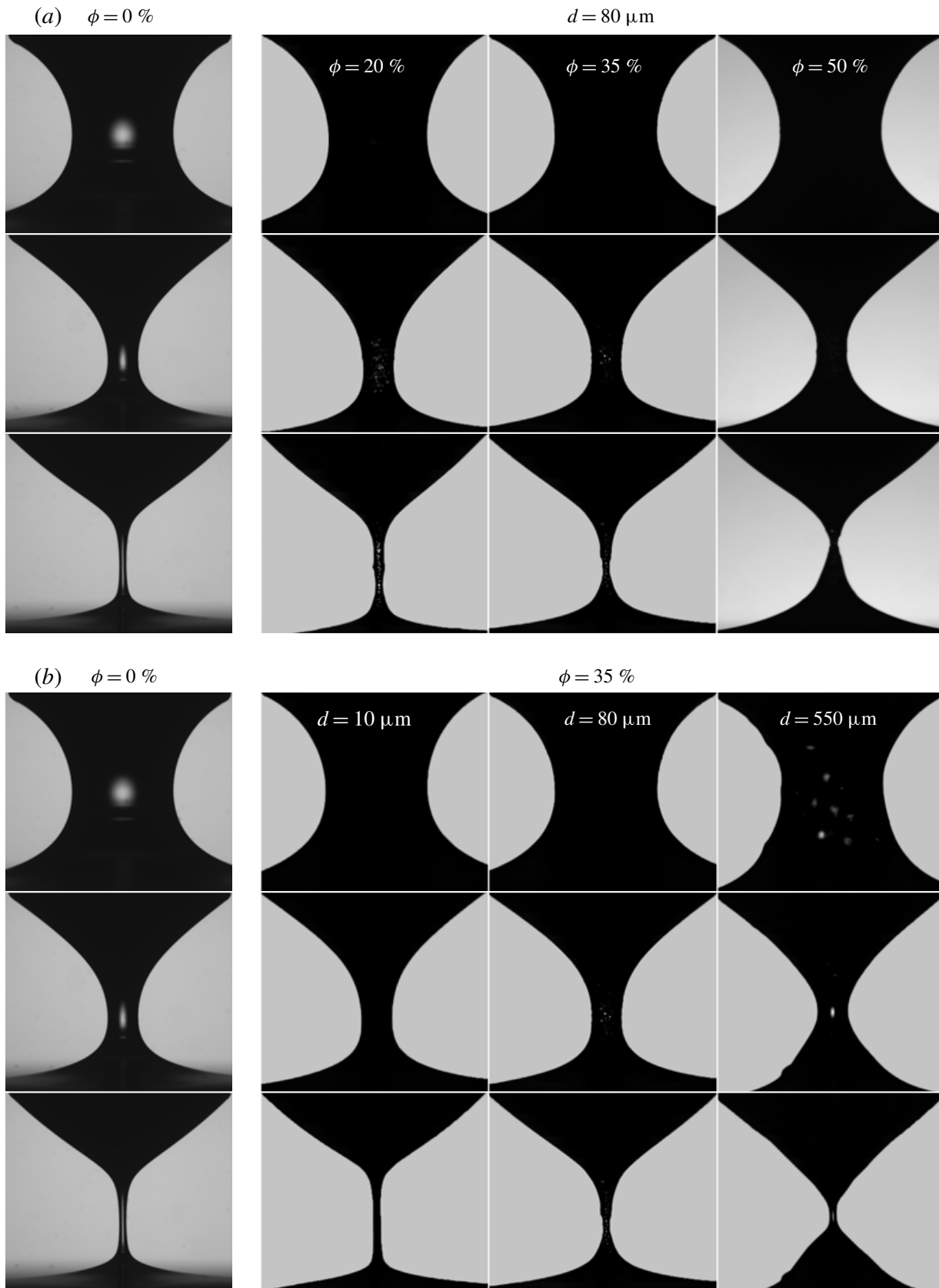


FIGURE 5. Bridge shape as pinch-off proceeds, at the same values of the neck diameter $h_{min} = 2, 0.6, \text{ and } 0.15\ \text{mm}$, from top to bottom respectively. (a) Suspensions having the same particle size ($d = 80\ \mu\text{m}$) but different particle volume fractions $\phi = 20, 35$ and 50% from left to right respectively. (b) Suspensions having the same particle volume fraction ($\phi = 35\%$) but different particle sizes $d = 10, 80$ and $550\ \mu\text{m}$ from left to right respectively. The leftmost sequences illustrate the pure liquid case.

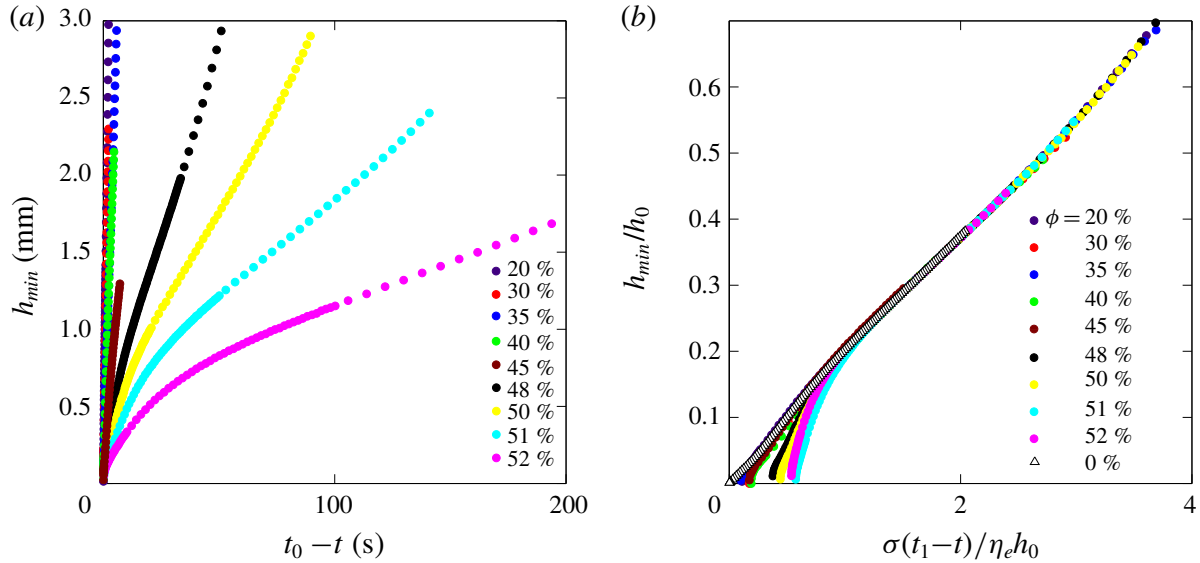


FIGURE 6. (Colour online) (a) Evolution of the neck diameter for suspensions of $10\ \mu\text{m}$ beads dispersed in PEG at volume fractions ranging from 20 to 52%. (b) Same data rescaled (and shifted by an arbitrary time t_1) to match the reference dynamics of the pure liquid ($\phi = 0\%$) in the early stage of the pinch-off. For each ϕ , the rescaling defines the effective viscosity η_e relative to that of the pure liquid.

and using it to rescale the data (note that the slope \dot{h}_{min} is obtained by averaging data over $h_{min} > 0.2h_0$). This definition simply stems from extending the prediction of the neck thinning rate of a pure liquid at large Oh (i.e. $\dot{h}_{min}|_{\phi=0} \propto \mathcal{H}(Bo) \sigma / \eta_0$) to the suspension case (i.e. $\dot{h}_{min} \propto \mathcal{H}(Bo) \sigma / \eta_e$) while keeping in mind that, in the present case, both σ and Bo are independent of ϕ . By rescaling the dynamics for each ϕ with this effective viscosity, a good collapse onto the pure liquid curve can be obtained at the beginning of the pinch-off process (starting at $h_{min} \gtrsim 2\ \text{mm}$), as shown in figure 6(b). However, at lower values of h_{min} , systematic deviations are observed as the suspension thinning significantly accelerates compared to that of the pure liquid.

Before analysing quantitatively the pinch-off dynamics, it is crucial to characterise these deviations. Figure 7 shows the evolution of h_{min} with increasing d for three particle volume fractions, $\phi = 20, 35$ and 50% , as well as for the viscous reference case ($\phi = 0$). The general trend is that, as the particle size increases, the deviation occurs earlier, i.e. the neck diameter at which the thinning accelerates becomes larger. This is clearly seen for $\phi = 20\%$ and $\phi = 35\%$ for which the deviation occurs at a neck diameter h^* which increases with increasing d . However, for $\phi = 50\%$, while a deviation onset which depends on d is recovered for the largest diameter explored ($d = 135\ \mu\text{m}$), a different behaviour is observed for smaller d . For $d < 135\ \mu\text{m}$, the suspension dynamics starts to depart from that of the pure viscous liquid at a value of the neck diameter, noted h' , which is independent of d , before a further deviation from this latter curve at the neck diameter h^* which depends on d , as seen in the inset of figure 7(c). This means that at large ϕ and smaller d , the departure from the viscous case first occurs at a neck diameter h' which differs from the diameter h^* . This unexpected observation is evidenced in figure 7(d) for $\phi = 50\%$. For $d \leq 80\ \mu\text{m}$, the onset of the deviation from the liquid reference case is constant at $h' \approx 0.18h_0$, whereas the onset of deviation from this already deviated curve, h^* , increases systematically with d . For $d > 80\ \mu\text{m}$, the d -dependence dominates and h' and h^* cannot be distinguished.

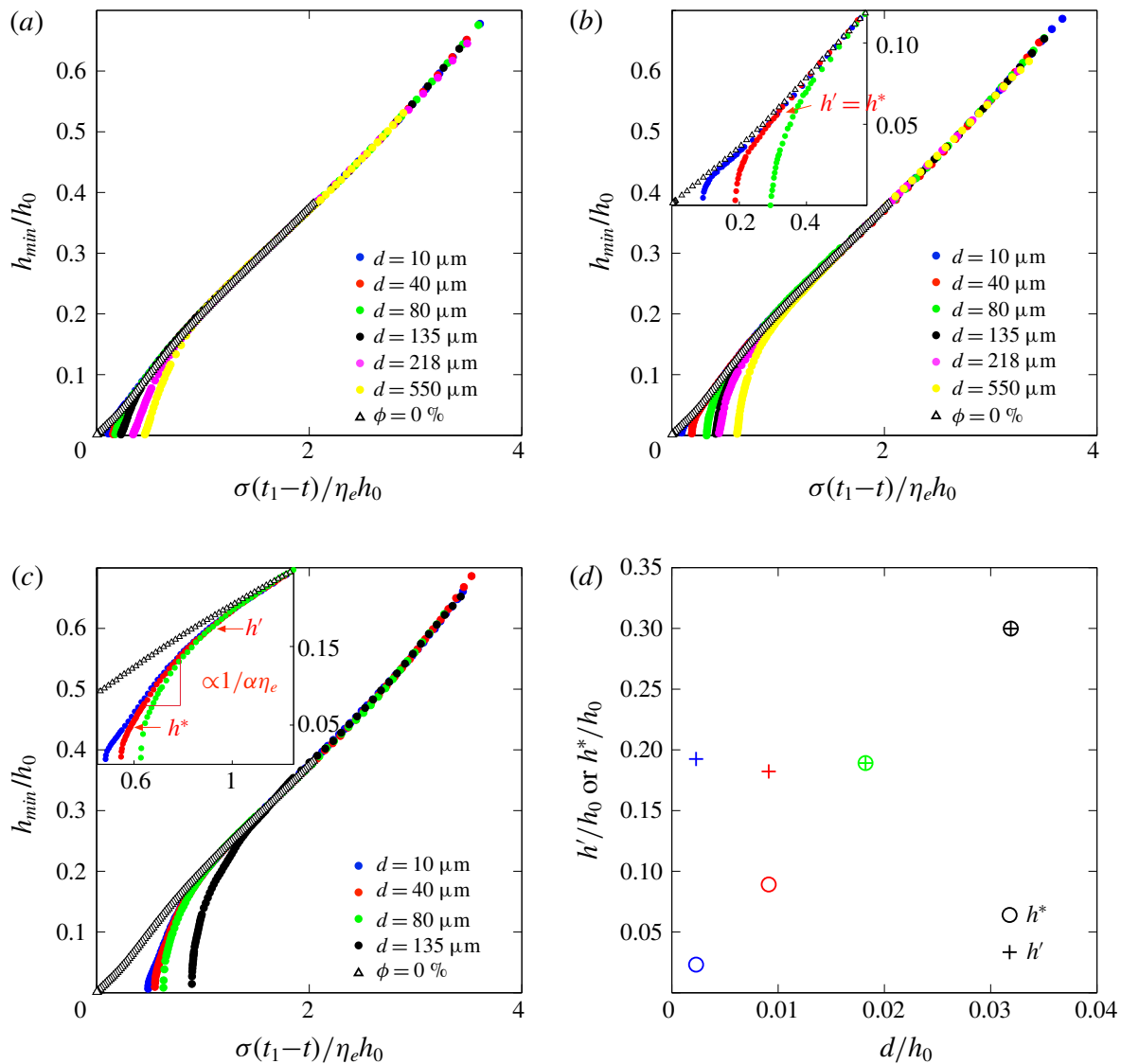


FIGURE 7. (Colour online) (a–c) Time evolution of the neck diameter for different particle sizes and particle volume fractions: (a) $\phi = 20\%$, (b) $\phi = 35\%$ and (c) $\phi = 50\%$. The insets in (b) and (c) are blow-ups and define (for $d = 40 \mu\text{m}$) the two deviation onset diameters, h' and h^* , at which the thinning deviates from the Newtonian case, and at which particle size effects are observed, respectively. The open triangles represent the reference case of a pure viscous liquid. (d) Neck diameter at the onset of the deviations for the different curves shown in (c). h' and h^* only differ from each other for sufficiently small particle sizes and large volume fractions.

These distinct behaviours in the evolution of h_{min} yields to the definition of two successive regimes which will be studied separately in the two next sections:

- (i) an effective-viscous-fluid regime in the early stage of the pinch-off, in which the dynamics is independent of the particle size and the suspension behaves as an effective viscous fluid, albeit pseudo-Newtonian (see § 3.2),
- (ii) a subsequent discrete regime in the late stage of the pinch-off, in which the dynamics depends on the particle size and the thinning rate significantly increases (see § 3.3).

3.2. Effective-viscous-fluid regime

In the effective-viscous-fluid regime, the neck thinning dynamics of the suspension is similar to that of a pure viscous liquid: the particles do not deform significantly the interface and, in the present case of neutrally buoyant particles, no sedimentation or creaming is anticipated. This regime is thus entirely characterised by an effective viscosity of the suspension, η_e , that can be inferred using (3.1). However, as discussed above, for large ϕ , two different rates of thinning are successively measured, respectively above and below $h' \simeq 0.18 h_0$. While the effective regime has been reported in the literature (Furbank & Morris 2004, 2007), this latter behaviour for a concentrated suspension has not been documented.

3.2.1. Case $h_{min} > h'$

We first focus on the range $h_{min} > h'$, since an effective-viscous-fluid regime can be observed for all the particle volume fractions and all the particle sizes in that case. The effective viscosity η_e measured over this range and normalised by that of the suspending liquid η_0 is shown in figure 8(a) as a function of ϕ for different d . The collapse of the data for $10 \mu\text{m} \leq d \leq 550 \mu\text{m}$ shows that there is no dependence on particle size and thus assesses that the suspension can be seen as a continuum. The effective viscosity η_e/η_0 increases with increasing ϕ and seems to diverge at a critical particle volume fraction $\phi_c \simeq 54\%$. This value of ϕ_c is somehow smaller than that ($\phi_c \simeq 58 - 62\%$) usually reported for non-Brownian suspensions (see e.g. Zarraga *et al.* 2000; Boyer, Guazzelli & Pouliquen 2011a) but happens to be similar to that observed by Blanc, Peters & Lemaire (2011) for $30 \mu\text{m}$ particles in a different Newtonian suspending liquid.

The effective viscosity η_e is not significantly altered when the particles are coated, i.e. by varying their wetting contact angle θ from typically 0° to typically 90° (see table 1). This shows that the effective surface tension which drives the dynamics is unaffected by the presence of small partially non-wetted particles in the range of ϕ examined. This is also consistent with the direct observation that the static shape of the pending drop used to form the bridge is unaffected by these particles. This means that, even during the first stage of the pinch-off when the bridge interfacial area begins to shrink, the mean curvature of the interface is not overall affected by the presence of small partially non-wetted particles. Same values of η_e are also measured using a smaller nozzle diameter ($h_0 = 0.8 \text{ mm}$) and a different pinch-off configuration, namely that of a pending drop detaching from a nozzle. This shows that the early pinch-off dynamics only depends on the particle volume fraction ϕ and is independent of the other parameters investigated (d , θ , h_0) and of the pinch-off configuration. This clearly evidences that, in this regime, the suspension can be seen as a bulk and continuum medium.

The effective viscosity η_e measured during the early stage of pinch-off is also compared in figure 8(b) to measurements of the shear viscosity η_s of the same suspensions performed with a plate–plate rheometer. These two viscosities increase similarly with increasing ϕ and present the same divergence (within less than 1%) at the same critical value $\phi_c \approx 54\%$. These experimental data coming from two different types of measurements are found to be in good agreement with the classical correlation of Eilers (see e.g. Stickel & Powell 2005) as well as that of Boyer *et al.* (2011a). They both present a divergence which scales as $\sim(\phi_c - \phi)^{-2}$ near the critical value $\phi_c \approx 54\%$ above which the suspension is unable to flow.

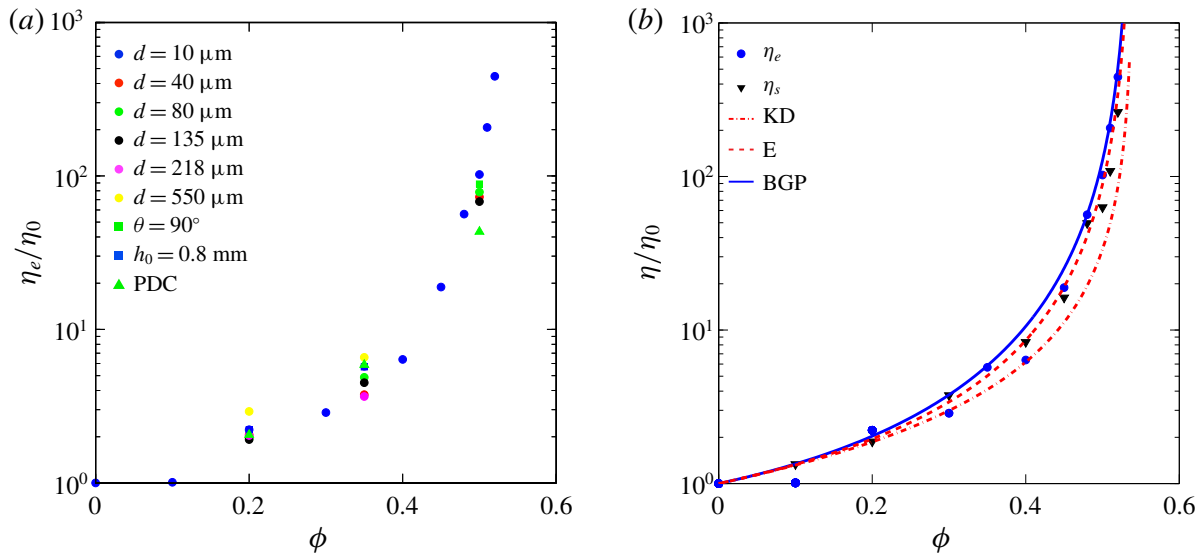


FIGURE 8. (Colour online) (a) Relative effective viscosity η_e/η_0 versus ϕ during the early stage of the pinch-off ($h_{min} > h' \simeq 0.18 h_0$) for different diameter d , nozzle diameter h_0 , contact angle θ and for the (PDC) pendant drop configuration. Unless otherwise specified, $d = 80$ μm , $h_0 = 4.39$ mm, $\theta \approx 0^\circ$ and the configuration is that of a capillary bridge. (b) Relative effective viscosity η_e/η_0 and relative shear viscosity η_s/η_0 versus ϕ for $d = 10$ μm . The shear viscosity η_s is measured independently with a cone–plate rheometer at a typical shear rate $\approx -\dot{h}_{min}/h_{min}$. The three lines represent the correlations of (KD) Krieger–Dougherty, $\eta_s/\eta_0 = [\phi_c/(\phi_c - \phi)]^{5\phi_c/2}$, of (E) Eilers, $\eta_s/\eta_0 = [1 + (5/4)\phi_c\phi/(\phi_c - \phi)]^2$, and of (BGP) Boyer *et al.*, $\eta_s/\eta_0 = 1 + (5/2)\phi_c\phi/(\phi_c - \phi) + \mu^c(\phi)[\phi/(\phi_c - \phi)]^2$ with the contact contribution $\mu^c(\phi)$ varying in the range 0.3–0.7, and with $\phi_c = 54$ %.

3.2.2. Case $h_{min} < h'$

In the late stage of pinch-off ($h_{min} < h'$), a different effective-viscous-fluid regime can be observed for dense suspensions. This regime is seen when it is not screened by finite-size effects that dominate the later stage of the pinch-off. This implies that the particles should be much smaller than the nozzle size h_0 . The focus in this section is therefore on the experiments with the smallest particles. In this case, for $\phi \gtrsim 35$ %, the dynamics departs from that of the pure liquid at a constant neck diameter $h' \simeq 0.18 h_0$. For $h_{min} < h'$, the neck thinning rate adopts a constant value which differs from that observed for $h_{min} > h'$ (discussed in the preceding section) until finite-size effects eventually dominate for a much thinner neck. As shown in the inset of figure 7(c), this dynamics observed for $h_{min} < h'$ does not depend upon d . The suspension still behaves as an effective fluid. However, although the shape of the capillary bridge is essentially not modified in this regime until h_{min} has reached h^* (as evidenced in figures 5 and 9b), it is rather delicate to infer a quantitative measurement of some effective viscosity from the sole value of h_{min} once a deviation from the pure liquid viscous case has occurred. We thus characterise this regime through the ratio $\alpha \equiv \eta_e|_{h^* < h_{min} < h'} / \eta_e|_{h_{min} > h'}$, with η_e defined as in (3.1), which represents the change in the pinching rate relative to its value for $h_{min} > h'$. If the flow remains uniformly a Newtonian Stokes flow below h' , the ratio α precisely measures the relative change in the effective viscosity around h' . More generally, it only qualitatively reflects the change in the effective viscosity at the neck.

The thinning rate ratio α is shown in figure 9(a) for increasing ϕ . While it is equal to 1 for $\phi \lesssim 35$ %, it becomes progressively smaller for larger ϕ until it has decreased

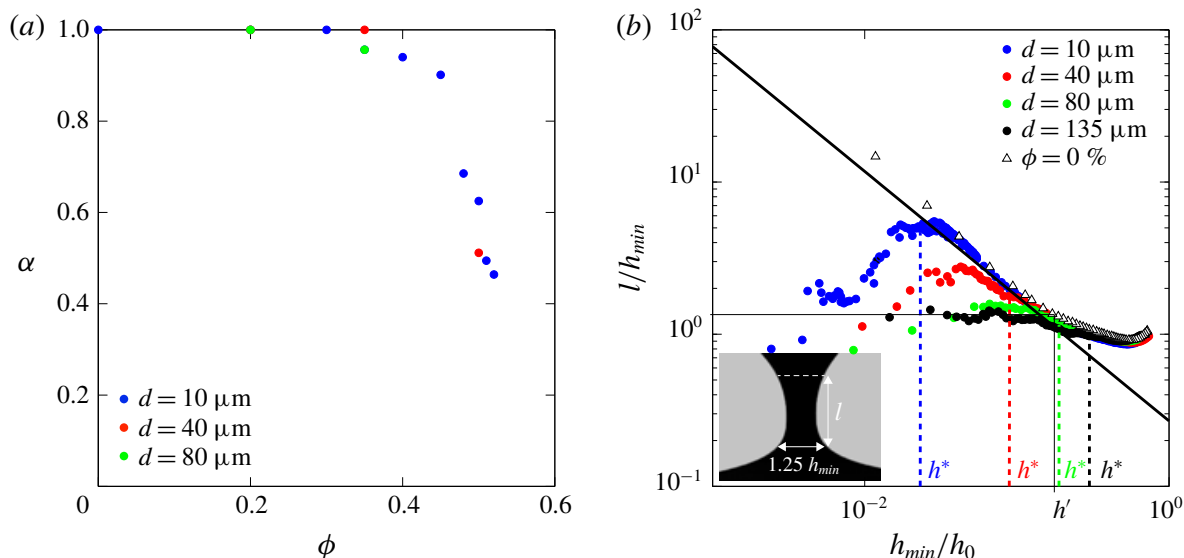


FIGURE 9. (Colour online) (a) Ratio α of the pinching rates after and before $h_{min} = h'$ (see text). (b) Bridge aspect ratio l/h_{min} versus h_{min}/h_0 for suspensions at $\phi = 50\%$ and for the viscous liquid reference. The inset defines the typical length l over which the bridge diameter varies. The solid line shows the prediction for the self-similar shape evolution in a viscous extensional flow, $l/h_{min} \sim (h_{min}/h_0)^{\beta-1}$ with $\beta \simeq 0.175$ (Papageorgiou 1995). The vertical lines show the value of h^* for each particle size (dashed) and of h' (thin solid).

by typically one half at the largest ϕ explored ($\phi = 52\%$). This indicates that the effective viscosity is unchanged around $h_{min} = h'$ as long as $\phi \lesssim 35\%$, and suggests that for larger ϕ the effective viscosity decreases when h_{min} becomes smaller than h' .

Some insights into this evolution of the effective viscosity can be obtained by examining the bridge shape around the transition between the two effective-viscous-fluid regimes. Figure 9(b) shows the evolution of the bridge aspect ratio l/h_{min} as the neck is thinning down, i.e. as h_{min}/h_0 decreases. The axial elongation of the bridge l has been defined as the distance between two bridge cross-sections having a diameter of $1.25 h_{min}$ (the evolution of l is independent of the precise value adopted for the pre-factor), as depicted in the inset of figure 9(b). For the reference pure liquid, the aspect ratio, l/h_{min} , becomes significantly larger than one and follows the prediction for the self-similar shape evolution in a viscous extensional flow [$l/h_{min} \sim (h_{min}/h_0)^{\beta-1}$ with $\beta \simeq 0.175$ (Papageorgiou 1995)] when h_{min} becomes smaller than a value very close to that of $h' (\simeq 0.18 h_0)$. For the suspensions, this large aspect ratio as well as its self-similar evolution are recovered for $h^* \lesssim h_{min} \lesssim h'$.

The value of this aspect ratio has a direct impact on the nature of the flow inside the bridge. For a large aspect ratio, the flow can be considered as essentially extensional. For an aspect ratio of order one, it is more complex and contains a significant portion of pure shear. While the influence of the flow type does not affect the rheological response of a Newtonian fluid such as the present reference pure fluid (PEG), it may have an effect on the response of a suspension as the microstructure built by the particles is flow dependent (see e.g. Morris 2009). The ratio α could therefore reflect the effective viscosity difference between the two flow types. Figure 9(a) suggests that the effective viscosity is lower in the late extensional flow stage than in the early complex flow stage of the pinch-off for $\phi \gtrsim 40\%$. The fact that the difference in viscosities becomes significant above $\phi \gtrsim 40\%$ may be an additional indication of non-Newtonian effects as for these large ϕ normal stress differences happen to be

detectable in pure shear flow configurations (Zarraga *et al.* 2000; Boyer, Pouliquen & Guazzelli 2011*b*; Gallier *et al.* 2014). It should also be stressed that the slight shear-thinning behaviour mentioned in § 2.2 is also expected to reduce the viscosity as the pinching proceeds and the rate of deformation increases.

Nonetheless, the difference between these two viscosities is not large (a factor of at most two at the largest ϕ explored), both of them are similar to the steady shear viscosity measured with a cone–plate rheometer, as evidenced in figure 8(*b*). This suggests that, for a suspension, the shear stresses in the complex non-steady and partly extensional flow in the neck of the bridge do not differ in order of magnitude from those developing in a steady pure shear flow with the same rate of deformation. This may indicate that non-Newtonian normal stresses (which never exceed the shear stress in a purely sheared suspension) do not dominate the extensional rheology of the suspension (in contrast with e.g. dilute polymer solutions at large Deborah numbers for which the Trouton ratio can exceed 10^3 , McKinley & Sridhar 2002). This observation is consistent with numerical results suggesting that different types of suspensions – contactless Brownian particles (Sami 1996), frictional and frictionless non-Brownian particles (Seto, Giusteri & Martiniello 2017; Cheal & Ness 2018) – have a Trouton ratio which is close to that of a Newtonian liquid, except maybe very close to ϕ_c (Cheal & Ness 2018).

3.3. Discrete regime

In the last stage of the pinch-off, the thinning dynamics accelerates significantly and becomes driven by the discrete nature of the suspension, as previously noted by Furbank & Morris (2004), Bonnoit *et al.* (2012) and Mathues *et al.* (2015). Figure 10(*a*) shows this last thinning stage for a suspension with $d = 10 \mu\text{m}$. In order to resolve smaller values of h_{min} , the data were obtained with a larger optical magnification and a shorter time resolution than in figure 6 (same values are obtained over the common range of observation). The actual difference with figure 6 is that the time is now rescaled by $\alpha\eta_e$ instead of η_e . This provides a better presentation of the finite-size effects, in particular at large ϕ where the two thinning rates differ from each other.

The very last instants of the pinch-off are first considered. Figure 10(*b*) presents the terminal thinning rate of the bridge, i.e. the value of \dot{h}_{min} measured at $h_{min} \approx d$. Over the whole range of ϕ explored, this value is equal to the thinning rate of the pure suspending liquid within a factor two. This factor has to be compared with the 10^3 times slower rate observed prior to this acceleration for the largest ϕ in the effective-viscous-fluid regime. We therefore recover that the terminal pinching rate is dictated by the pure interstitial fluid, as anticipated by Furbank & Morris (2007) and reported by Bonnoit *et al.* (2012) and Mathues *et al.* (2015).

We then turn to the examination of the onset of the thinning acceleration. We choose to characterise it by the diameter h^* at which the thinning rate $|\dot{h}_{min}|$ has increased by 30 % from its constant value prior to the acceleration (we checked that the value of h^* is not sensitive to the precise value of the criterion), see the inset of figure 10(*a*). Figure 11(*a*) presents the variation with ϕ of the onset diameter h^* made dimensionless by d , for particle diameters ranging from 10 to 135 μm . The inset graph of this figure shows that all the data, including those for the coated particles ($\theta \simeq 90^\circ$), collapse approximately on the same curve. Note that the data of Mathues *et al.* (2015) for polystyrene particles also collapse on this curve. Their smallest (3 μm PMMA) particles however deviate from this general behaviour, which may be due to colloidal forces as suggested by Mathues *et al.* (2015).

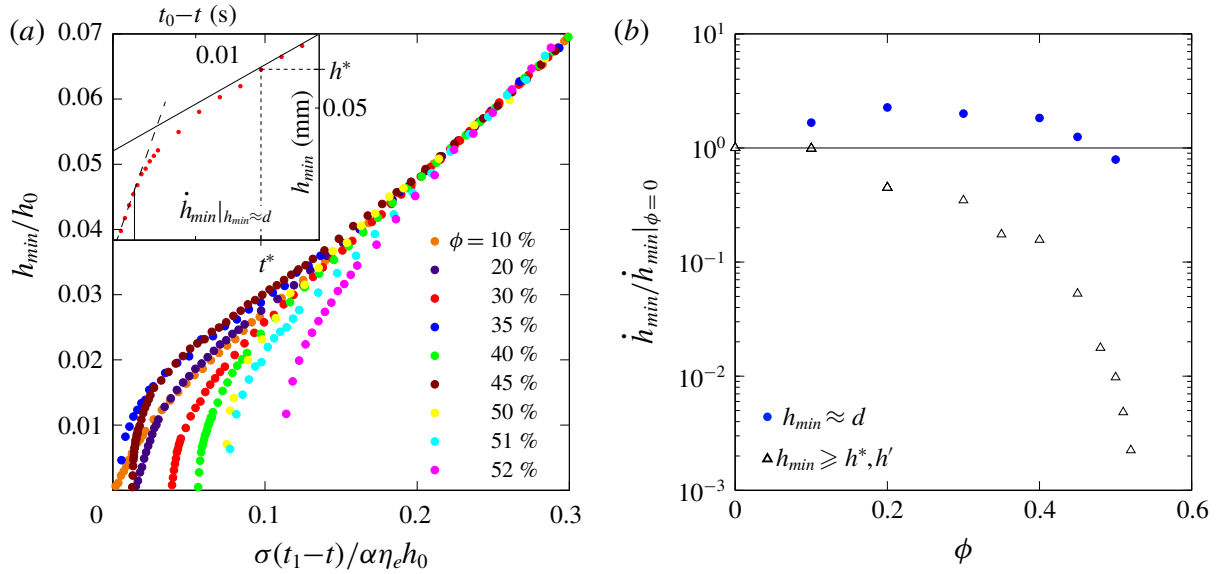


FIGURE 10. (Colour online) (a) Time evolution of the neck diameter in the last stage of the pinch-off for a suspension having $d = 10 \mu\text{m}$. The inset defines the terminal thinning rate of the neck $\dot{h}_{min}|_{h_{min} \approx d}$ as well as the time t^* and the neck diameter $h^* \equiv h_{min}(t^*)$ at the onset of the departure from the effective-viscous-fluid curve. (b) Terminal thinning rate measured at $h_{min} \approx d$ (filled circles). The horizontal line shows the thinning rate of the pure suspending liquid. For comparison, the open triangles represent the rate of thinning in the effective-viscous-fluid regime ($h_{min} > h'$).

This collapse indicates that h^* is linear in d (in this range of d) and increases monotonically with increasing ϕ (in the range of ϕ investigated). The increase becomes steeper for increasing ϕ and suggests a weak algebraic divergence at the jamming point, $h^*/d \sim (\phi_c - \phi)^{-1/3}$, as evidenced in the main graph of figure 10(a).

This weak divergence at jamming does not agree with the stochastic prediction ($= 0.65 \phi^{-1/3} (\phi_c - \phi)^{-1}$) of Mathues *et al.* (2015) who invoked an effective decrease in the suspension viscosity owing to Poissonian particle concentration fluctuations in the small volume of the neck (i.e. the local random fluctuations expected in the limit of low ϕ). Although weaker, the observed divergence is reminiscent of that predicted for the particle displacement correlation length ξ in simulations of over-damped shear flow of hard spheres at the jamming point ($\xi/d \sim (\phi_c - \phi)^{-0.6}$ for frictionless particles and $\xi/d \sim (\phi_c - \phi)^{-0.43}$ for both frictionless and frictional particles in the range $\phi_c - \phi \gtrsim 1\%$, respectively found by Olsson & Teitel 2007; Trulsson, DeGiuli & Wyart 2017). This suggests that discrete effects accelerate the pinching when the smallest dimension of the thread, namely h_{min} , has reduced down to the scale at which the fluctuating motion of the particles is correlated. This decreasing resistance to deformation of the suspension with increasing confinement might be related to the compliance of the capillary confinement imposed by the liquid interface.

The proportionality between h^* and d (seen in figure 11(a) for $d \lesssim 135 \mu\text{m}$) does not hold above $d/h_0 \approx 0.03$, i.e. when the onset diameter $h^* \sim 10d$ becomes of the order of the initial bridge diameter h_0 , see figure 11(b). This may be due to the qualitative change in the bridge aspect ratio l/h_{min} (discussed in § 3.2.2). Indeed, the flow around the neck when $h_{min} \approx h^*$ is expected to be similar for the different particle sizes, only if the bridge is significantly slender in all cases, i.e. if $h^* \sim 10d \lesssim h' \simeq 0.18 h_0$ for all of them, which fails to be true for $d/h_0 \gtrsim 0.03$.

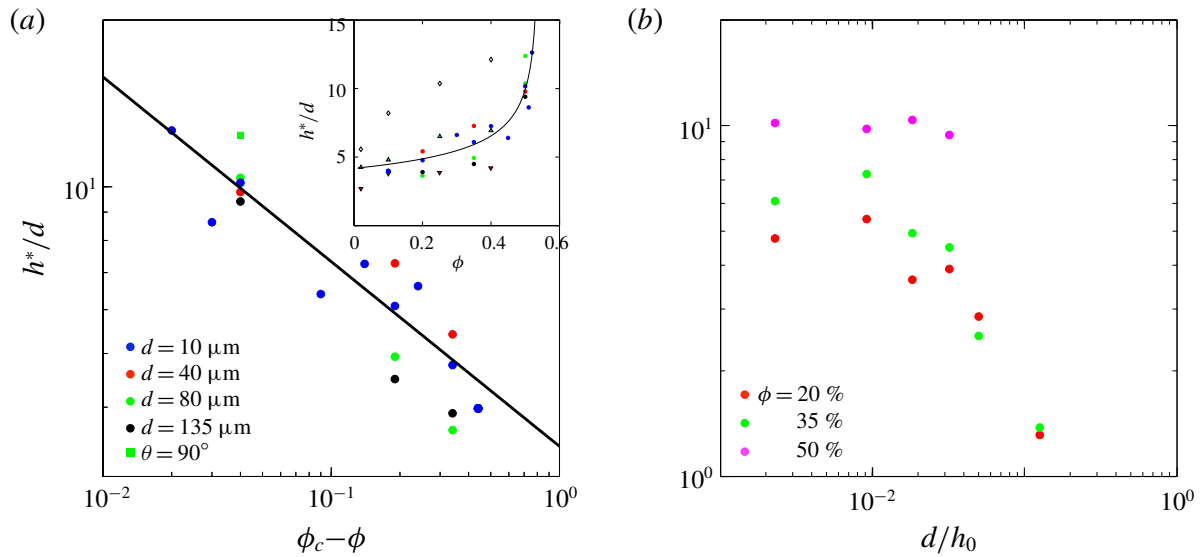


FIGURE 11. (Colour online) (a) Neck diameter at the onset of the discrete regime, h^* , as a function of $\phi_c - \phi$ for d ranging from 10 to 135 μm . The green squares ($\theta = 90^\circ$) correspond to the coated 80 μm spheres. The line shows $h^*/d \sim (\phi_c - \phi)^{-1/3}$. The inset displays the same data versus ϕ together with those extracted from figure 8 of Mathues *et al.* (2015) (3 μm PMMA particles \diamond , 10 μm polystyrene particles \triangle , 20 μm polystyrene particles ∇). (b) Neck diameter h^* as a function of d up to $d = 550 \mu\text{m}$ for three different particle volume fractions.

Lastly, we examine the duration of the acceleration, which indicates how much shorter is the suspension pinch-off compared to that of a pure liquid of the same viscosity. Figure 12(a) presents this duration t^* , defined by $h_{min}(t^*) \equiv h^*$ (see inset in figure 7(a)), for $d = 10 \mu\text{m}$. The duration t^* is found to be close to $\alpha\eta_e h^*/\sigma$ for the whole range of particle volume fractions. For comparison, figure 12(a) also presents the time needed to thin down from h^* at the terminal velocity $\propto \sigma/\eta_0$. Clearly, the average thinning rate is dominated by that of the pseudo-viscous-fluid regime prior to the acceleration. Therefore, in the present range of interest of $\phi \leq 52\%$, the presence of particles does not modify the order of magnitude of the overall duration but only shortens the pinch-off by a pre-factor of order one.

With the knowledge of h^* and t^* , the acceleration of $h_{min}(t)$ can be plotted in these natural scales of the discrete regime in figure 12(b) for $d = 10 \mu\text{m}$ and increasing ϕ . For low ϕ , the thinning rate is essentially constant, since $\alpha\eta_e = \eta_e \sim \eta_0$, whereas for larger ϕ , the time evolution of h_{min} becomes increasingly concave. Therefore, the discrete regime is not unique in the sense that the function $h_{min}([t_0 - t]/t^*)/h^*$ continuously depends upon the particle volume fraction. An attempt to estimate this ϕ -dependence can be undertaken close to the jamming point. If h_{min}/h^* is a power law of $(t_0 - t)/t^*$, the observations $h^*/d \propto (\phi_c - \phi)^{-1/3}$, $t^* \propto \alpha\eta_e h^*/\sigma$, and $\dot{h}_{min}|_{h_{min}=d}/\dot{h}_{min}|_{h_{min}=h^*} = \alpha\eta_e/\eta_0$ together with $\alpha\eta_e/\eta_0 \propto (\phi_c - \phi)^{-2}$ imply $h_{min}/h^* = [(t_0 - t)/t^*]^{1/7}$ in the limit $\phi \rightarrow \phi_c$. This particularly steep acceleration is shown as a dashed line in figure 12. It is found to significantly overestimate the actual acceleration of h_{min} for the largest particle volume fraction ($\phi = 50\%$) for which the finite-size acceleration regime could be accurately resolved. Without observations at larger ϕ , it is not possible to conclude whether this estimate is relevant for ϕ closer to $\phi_c \simeq 54\%$.

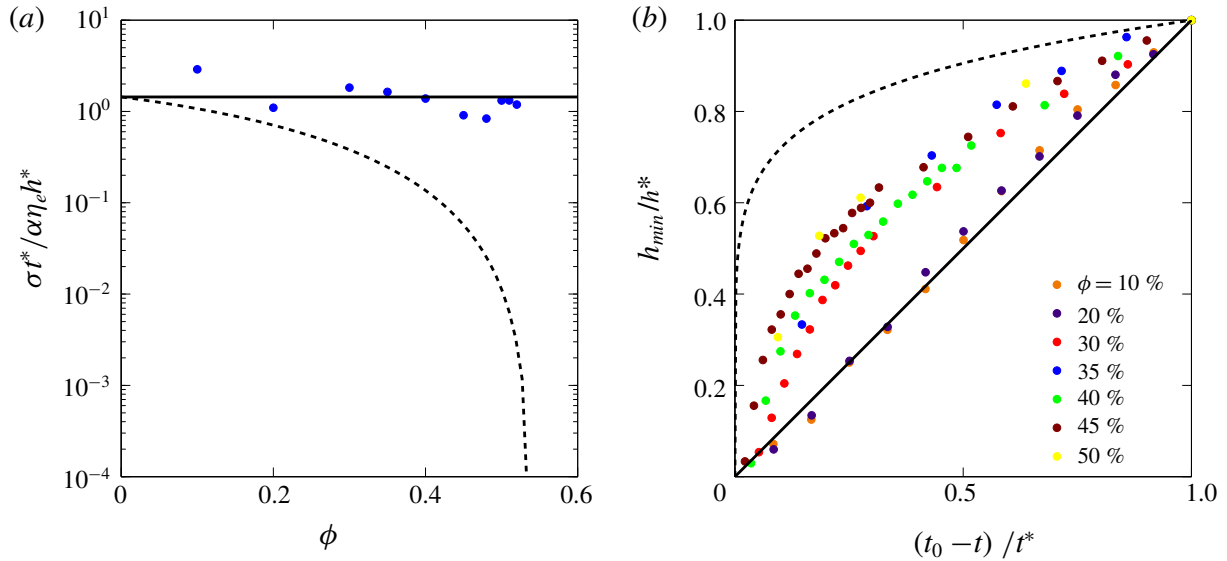


FIGURE 12. (Colour online) (a) Normalised duration of the discrete regime as a function of ϕ for $d = 10 \mu\text{m}$ (filled circles). The solid line represents the average over the different ϕ , $t^* \simeq 1.4 \alpha \eta_e h^* / \sigma$. For comparison, the dashed line corresponds to the duration expected for the pure liquid ($\sim \eta_0 h^* / \sigma$). (b) Time evolution of h_{min} in the natural scales of the discrete regime for ϕ ranging from 10 to 50% ($d = 10 \mu\text{m}$). The solid and dashed lines represent $h_{min}/h^* = (t_0 - t)/t^*$ and $h_{min}/h^* = [(t_0 - t)/t^*]^{1/7}$, respectively.

4. Conclusion

Adding particles to a viscous liquid thread dramatically influences its break-up. It both alters the transient bridge shapes and slows down the pinching with respect to the pure liquid case. We have studied the pinching dynamics of suspensions of non-Brownian, mono-disperse, neutrally buoyant, hard spheres using a capillary bridge at large Ohnesorge numbers and have identified the influence of the suspension parameters (volume fraction ϕ , diameter d and wetting contact angle θ of the particles) on the rate of pinching. Two successive regimes of thinning have been distinguished.

First, we observe an effective-viscous-fluid regime in the early stage of the pinch-off, in which the dynamics only depends on ϕ and is independent of d . In this regime, the suspension behaves as an effective viscous fluid and the pinching is similar to that of a viscous liquid. The neck thinning rate can be written as $\dot{h}_{min} \sim -\sigma/\eta_e$ and is solely determined by the effective viscosity of the suspension, η_e . This effective viscosity is similar to the steady shear viscosity measured using a conventional rheometer and diverges as $(\phi_c - \phi)^{-2}$ at the critical volume fraction, $\phi_c \approx 54\%$. For $\phi \gtrsim 35\%$, the precise value inferred for the effective viscosity depends on whether the thinning flow is still a complex shear flow (η_e for $h_{min} > h' \simeq 0.18 h_0$) or has already transited to the primarily extensional flow specific of the viscous break-up (a lower value for $h_{min} < h'$). This slight difference in thinning rates depending on the nature of the flow suggests weak non-Newtonian effects at large ϕ .

We then identify a subsequent discrete regime in which the dynamics depends both on d and ϕ . In this regime, the thinning rate, $|\dot{h}_{min}|$, accelerates from the effective-viscous-fluid thinning rate, $\sim \sigma/\alpha \eta_e$, to the interstitial-pure-fluid thinning rate, $\sim \sigma/\eta_0$. An important output of the present study is the determination of the transition neck diameter, $h^* \sim d(\phi_c - \phi)^{1/3}$, and of the duration of this acceleration until break-up, $t^* \sim \alpha \eta_e h^* / \sigma$. This latter duration, h^* , is that typically expected from

the effective-viscous-fluid regime thinning rate, $\alpha\eta_e/\sigma$. The weak divergence of the transition neck h^* at jamming does not agree with the stochastic prediction of Mathues *et al.* (2015) and can be compared to the weak divergence found for the particle displacement correlation length at the jamming transition. However, it must be stressed that other mechanisms could contribute to the acceleration dynamics of the suspension thread. The neck may become increasingly diluted owing to shear-induced migration of particles from the high shear region of the neck to the low shear regions. In the present rapidly evolving extensional flow, such a migration process is certainly complex, with particles migrating away from the thin neck region but also across the neck width until they protrude at the interface. This needs to be further explored.

An important point is that the two regimes are found to be independent of the wetting contact angle made by the liquid on the particles in the studied range $0 \lesssim \theta \lesssim 90^\circ$ and $0 < \phi \lesssim 52\%$. This suggests that the effective surface tension of the suspension is very similar to that of the suspending liquid, indicating that the interface is not thermodynamically equilibrated, i.e. is not saturated with particles. This situation is expected to be generic of situations where new interfaces are created, like pending drops and stretched jets, with large non-Brownian particles.

Last, it is worth mentioning that the present study focuses on the configuration of a capillary bridge, i.e. a thread with a short imposed length which pinches off at a single location. If this configuration is relevant for studying the time scale of the break-up, it does not permit addressing the question of the intrinsic length scale selected by the fragmentation of a sufficiently long thread, i.e. the size of the thread fragments. The different regimes discussed above suggests that the fragment size of an isolated thread with ‘small’ particles ($h^* \ll h_0$) would be essentially determined by the effective viscosity of the suspension (dictating the wavelength of the Plateau-Rayleigh destabilisation) whereas that of concentrated threads with a diameter of a few particle sizes ($h_0 \sim h^*$) might be prescribed by discrete effects. The consequences regarding the length and drop sizes of a falling jet are open questions that need future works.

Acknowledgement

This work has been financially supported by the Agence Nationale de la Recherche through grant ANR-14-ACHN-0019-01.

Supplementary movies

Supplementary movies are available at <https://doi.org/10.1017/jfm.2018.530>.

REFERENCES

- BLANC, F., PETERS, F. & LEMAIRE, E. 2011 Local transient rheological behavior of concentrated suspensions. *J. Rheol.* **55**, 835–854.
- BONNOIT, C., BERTRAND, T., CLÉMENT, E. & LINDNER, A. 2012 Accelerated drop detachment in granular suspensions. *Phys. Fluids* **24**, 043304.
- BOYER, F., GUAZZELLI, É. & POULIQUEN, O. 2011a Unifying suspension and granular rheology. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 188301.
- BOYER, F., POULIQUEN, O. & GUAZZELLI, É. 2011b Dense suspensions in rotating-rod flows: normal stresses and particle migration. *J. Fluid Mech.* **686**, 5–25.
- CHEAL, O. & NESS, C. 2018 Rheology of dense granular suspensions under extensional flow. *J. Rheol.* **62**, 501–512.

- COUSSOT, P. & GAULARD, F. 2005 Gravity flow instability of viscoplastic materials: the ketchup drip. *Phys. Rev. E* **72**, 031409.
- DAY, R. F., HINCH, E. J. & LISTER, J. R. 1998 Self-similar capillary pinchoff of an inviscid fluid. *Phys. Rev. Lett.* **80** (4), 704–707.
- VAN DEEN, M. S., BERTRAND, T., VU, N., QUÉRÉ, D., CLÉMENT, E. & LINDNER, A. 2013 Particles accelerate the detachment of viscous liquids. *Rheol. Acta* **52**, 403–412.
- DOSHI, P., SURYO, R., YILDIRIM, O. E., MCKINLEY, G. H. & BASARAN, O. A. 2003 Scaling in pinch-off of generalized Newtonian fluids. *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **113**, 1–27.
- EGGERS, J. 1993 Universal pinching of 3D axisymmetric free surface flow. *Phys. Rev. Lett.* **71** (21), 3458–3460.
- EGGERS, J. & VILLERMAUX, E. 2008 Physics of liquid jets. *Rep. Prog. Phys.* **71**, 036601.
- FURBANK, R. & MORRIS, J. 2004 An experimental study of particle effects on drop formation. *Phys. Fluids* **16**, 1777–1790.
- FURBANK, R. J. & MORRIS, J. 2007 Pendant drop thread dynamics of particle-laden liquids. *Intl J. Multiphase Flow* **33**, 448–468.
- GALLIER, S., LEMAIRE, E., PETERS, F. & LOBRY, L. 2014 Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles. *J. Fluid Mech.* **757**, 514–549.
- HE, Y. 2008 Application of flow-focusing to the break-up of an emulsion jet for the production of matrix-structured microparticles. *Chem. Engng Sci.* **63**, 2500–2507.
- HOATH, S. D., HSIAO, W. K., HUTCHINGS, I. M. & TULADHAR, T. R. 2014 Jetted mixtures of particle suspensions and resins. *Phys. Fluids* **26**, 101701.
- HUISMAN, F. M., FRIEDMAN, S. R. & TABOREK, P. 2012 Pinch-off dynamics in foams, emulsions and suspensions. *Soft Matt.* **8**, 6767–6774.
- INGOLD, C. T. & HADLAND, S. A. 1959 The ballistics of *Sordaria*. *New Phytol.* **58**, 44–57.
- KORKUT, S., SAVILLE, D. A. & AKSAY, I. A. 2008 Colloidal cluster arrays by electrohydrodynamic printing. *Langmuir* **24**, 12196–12201.
- MATHUES, W., MCILROY, C., HARLEN, O. G. & CLASEN, C. 2015 Capillary breakup of suspensions near pinch-off. *Phys. Fluids* **27**, 093301.
- MCILROY, C. & HARLEN, O. G. 2014 Modelling capillary break-up of particulate suspensions. *Phys. Fluids* **26**, 033101.
- MCKINLEY, G. H. & SRIDHAR, T. 2002 Filament-stretching rheometry of complex fluids. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **34**, 375–415.
- MISKIN, M. & JAEGER, H. 2012 Droplet formation and scaling in dense suspensions. *Proc. Natl Acad. Sci.* **109**, 4389–4394.
- MORRIS, J. 2009 A review of microstructure in concentrated suspensions and its implications for rheology and bulk flow. *Rheol. Acta* **48**, 909–923.
- MORRIS, J. F. & BOULAY, F. 1999 Curvilinear flows of noncolloidal suspensions: the role of normal stresses. *J. Rheol.* **43**, 1213–1237.
- OLSSON, P. & TEITEL, S. 2007 Critical scaling of shear viscosity at the jamming transition. *Phys. Rev. Lett.* **99** (17), 178001.
- PAPAGEORGIOU, D. T. 1995 On the breakup of viscous liquid threads. *Phys. Fluids* **7**, 1529.
- SAMI, S. 1996 Stokesian dynamics simulation of Brownian suspensions in extensional flow. PhD thesis, California Institute of Technology.
- SETO, R., GIUSTERI, G. G. & MARTINIELLO, A. 2017 Microstructure and thickening of dense suspensions under extensional and shear flows. *J. Fluid Mech.* **825**, R3.
- SOUZY, M., LHUISSIER, H., VILLERMAUX, E. & METZGER, B. 2017 Stretching and mixing in sheared particulate suspensions. *J. Fluid Mech.* **812**, 611–635.
- STICKEL, J. & POWELL, R. 2005 Fluid mechanics and rheology of dense suspensions. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **37**, 129–149.
- TRULSSON, M., DEGIULI, E. & WYART, M. 2017 Effect of friction on dense suspension flows of hard particles. *Phys. Rev. E* **95**, 012605.
- ZARRAGA, I. E., HILL, D. A. & LEIGHTON, D. T. JR 2000 The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids. *J. Rheol.* **44**, 185–220.

CHAPITRE 3

JET GRAVITAIRE

Nous abordons maintenant la fragmentation des suspensions particulières à proprement parler en considérant un jet étiré tout entier et les brisures multiples qui le réduisent en gouttes ou fragments. Ce chapitre s'appuie sur le chapitre précédent qui a permis de préciser l'échelle de temps du pincement capillaire d'une suspension. Il va cependant bien au delà en posant la question des échelles de longueur sélectionnées par la fragmentation, à savoir, la longueur de brisure d'un jet et la taille des gouttes ou fragments formés.

L'étude se concentre sur le cas d'un jet gravitaire, à débit constant, c'est-à-dire statistiquement stationnaire. Cette configuration est générique des jets formés dans les processus de fragmentation complexes rencontrés dans la nature ou l'industrie pour lesquels les effets aérodynamiques sont négligeables, car elle permet de varier la viscosité du jet, mais aussi son étirement, qui est contrôlé par la gravité, la vitesse initiale du jet et, éventuellement, par la viscosité du jet. Elle permet aussi une nouvelle mesure de la viscosité élongationnelle des suspensions, en utilisant justement cette influence de la viscosité sur l'étirement du jet.

La simplicité et la versatilité du dispositif expérimental nous permettent d'étudier l'influence des principaux paramètres de l'écoulement et de la suspension. Nous nous intéressons ici à l'influence sur la fragmentation des effets spécifiques aux suspensions et nous focalisons donc sur les suspensions concentrées pour lesquels nous avons vu que les effets liés au caractère discret sont les plus marqués. Nous utilisons ainsi une unique fraction volumique $\phi = 50\%$, et varions systématiquement et sur une large gamme la vitesse à la buse u_0 , la viscosité η_0 du liquide suspendant, et bien sûr le diamètre d des billes. Comme nous le verrons, ces variations permettent d'explorer les divers régimes de fragmentation impliquant des étirements limités par la viscosité ou par l'inertie, et la prévalence des effets capillaires ou des effets de taille finie des particules.

La spécificité de la fragmentation des suspensions est bien résumée par la figure 3.1, comparant deux jets extrudés de la même buse au même débit : un jet d'un liquide

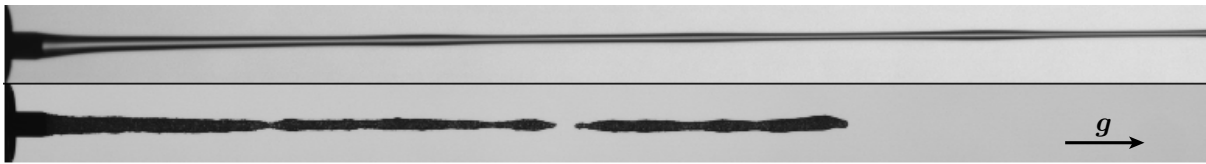


FIGURE 3.1 – Comparaison entre un jet de liquide newtonien (haut) et un jet du même liquide contenant des particules à une fraction volumique de 50%, extrudé de la même buse au même débit (bas). Bien que beaucoup plus visqueux du fait de la présence des particules, le jet de suspension est environs 4 fois plus court que le jet newtonien (qui se brise hors champ à une distance presque double de celle visible). La viscosité du liquide est $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, la vitesse initiale $u_0 = 0.17 \text{ m/s}$, le diamètre de la buse $h_0 = 2.95 \text{ mm}$ et la taille des billes $d = 218 \text{ }\mu\text{m}$.

newtonien et un jet du même liquide contenant des particules sphériques à une fraction volumique $\phi = 50\%$. Paradoxalement, bien que l'ajout des particules augmente fortement la viscosité du jet (typiquement d'un facteur 40), ce qui devrait retarder d'autant sa fragmentation, on constate que le jet de suspension est significativement plus court que le jet de liquide pur. Nous verrons que cette influence antagoniste des particules sur le jet est directement liée à l'accélération du pincement observée au chapitre 2 sur les ponts capillaires isolés.

Ce chapitre introduira d'abord le dispositif et les diverses méthodes expérimentales (§3.1) avant de présenter les mesures de rhéologie élongationnelle déduites de l'étirement du jet (§3.2). La longueur du jet sera traitée dans la section (§3.3) et dans un article soumis reproduit en section (§3.4). Enfin, nous discuterons les résultats sur la tailles et la forme des gouttes (§3.5 et §3.6).

3.1 Dispositif et méthodes expérimentales

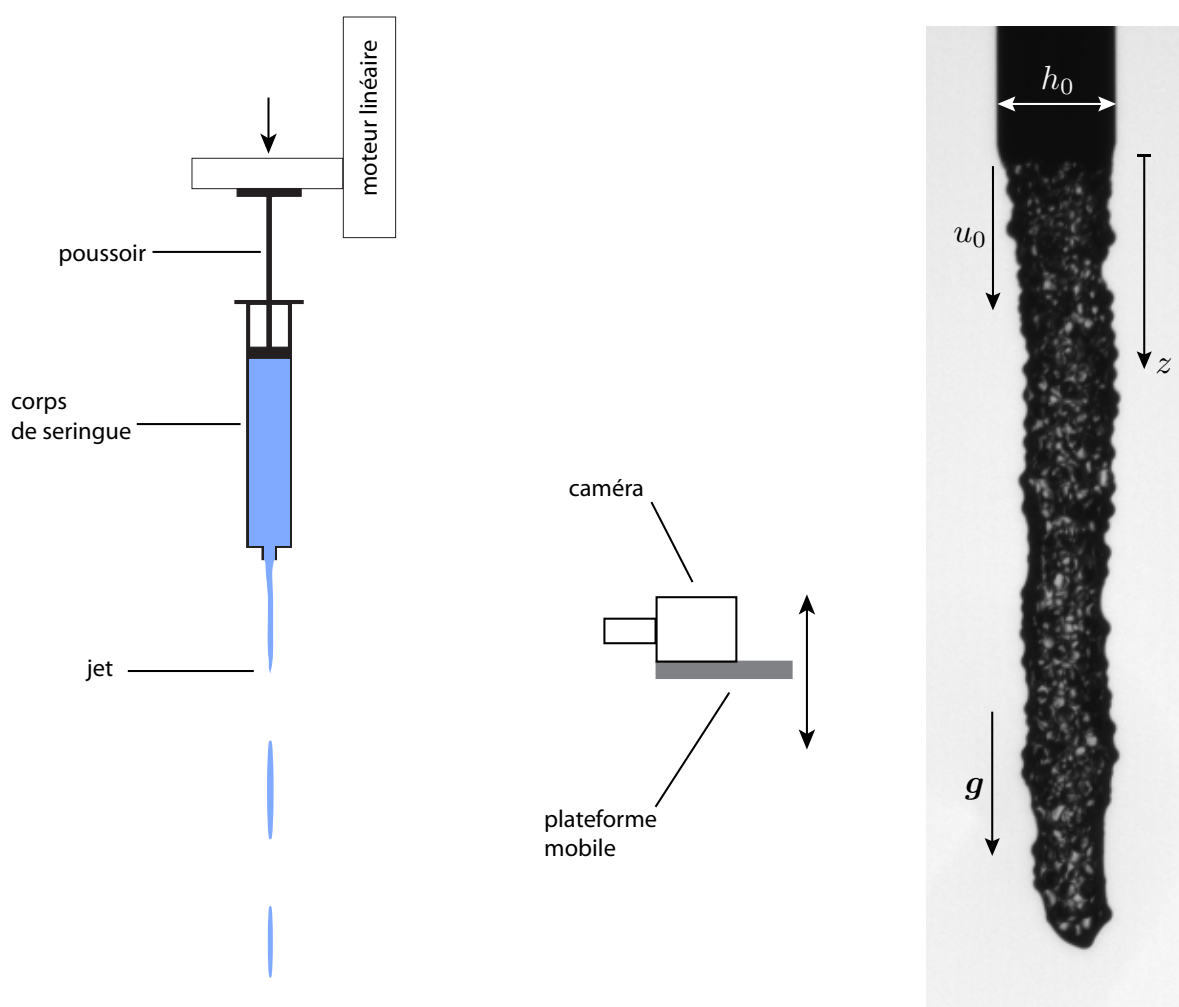


FIGURE 3.2 – Gauche : dispositif expérimental utilisé pour former les jets. Droite : photographie d'un jet de suspension en sortie de buse.

Le dispositif utilisé pour étudier les jets de suspension est schématisé sur la figure 3.1. Il permet de former et d'imager un jet à débit imposé et à fraction volumique contrôlée. La suspension (ou le liquide) est versée dans le corps d'une seringue en plastique d'un volume de 60 mL, puis extrudée à l'aide d'un piston rigide dont la translation est imposée par un moteur linéaire (PI M-413) de précision $0.25 \mu\text{m}$ au travers d'une buse cylindrique dont l'axe est vertical. Le piston appuie directement sur le liquide (sans air entre le piston et le liquide). Le jet formé est rétro-éclairé par une matrice de diodes lumineuses et filmé à l'aide d'une caméra rapide.

Les suspensions utilisées sont les mêmes que dans le chapitre précédent à savoir des billes de polystyrènes sphériques et monodisperses ($d = 10 \mu\text{m}$, $40 \mu\text{m}$, $80 \mu\text{m}$, $135 \mu\text{m}$, $218 \mu\text{m}$ et $550 \mu\text{m}$) suspendues dans trois liquides différents. de viscosités $\eta_0 = 2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ et $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. Les deux liquides de viscosité $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, à base de PEG et de

Ucon oil, ont des tensions de surface respectives $\sigma = 38.5$ mN/m et 50.5 mN/m. Ils permettent de vérifier la dépendance de la longueur du jet de suspension au type de mélange utilisé.

Afin d'imager le jet, dont la longueur varie avec les paramètres, la caméra est placée sur une plateforme mobile. Si le jet est trop long pour être entièrement contenu dans le cadre de la caméra, la distance entre la buse et le haut du cadre est mesurée. Trois objectifs de longueur focale de 16 mm, 25 mm et 50 mm sont utilisés afin d'adapter la prise de vue à la longueur du jet formé. La matrice de LED utilisée pour le rétro-éclairage est constituée de quatre panneaux de LED dont la hauteur totale, d'approximativement 150 cm, permet d'imager des jets longs.

Afin de préparer les suspensions, les billes sont délicatement saupoudrées à la surface du liquide. Après que quelques grammes de billes aient été immergés, la suspension est lentement cisailée à l'aide d'un moteur rotatif, ce qui permet de mélanger lentement la suspension sans introduire d'air. Ce processus est répété jusqu'à ce que toute la masse de billes nécessaire à l'obtention d'une suspension à $\phi = 50\%$ ait été ajoutée. La préparation des suspensions, dont le volume préparé est d'environ 100 mL est un processus pouvant nécessiter plus de 24h dans le cas des plus petites billes immergées dans les liquides les plus visqueux.

La préparation d'une suspension de billes de 10 μm dans le mélange Ucon/eau diffère cependant de la méthode évoquée ci-dessus. En effet, l'immersion de ces billes dans un liquide visqueux piège très fréquemment de petites bulles d'air dont il est difficile de se débarrasser. Pour pallier ce problème, les billes sont immergées dans un grand volume d'eau dégazée. Après la sédimentation de toutes les billes au fond du récipient, l'eau surnageante est retirée de façon à s'approcher au plus près de la quantité d'eau nécessaire au bon ratio de Ucon et d'eau. À ce stade il y a toujours un surplus d'eau par rapport à la masse nécessaire. Le Ucon dégazé est ensuite rajouté et le tout est lentement cisailé jusqu'à ce que le mélange soit homogène. La masse d'eau en surplus est finalement lentement évaporée tout en laissant la suspension se mélanger.

L'extrusion des suspensions est réalisée à des vitesses débitantes à la buse u_0 s'étalant de 2 mm/s à 1 m/s. Afin de vérifier que les effets de migration à la buse sont négligeables et que la fraction volumique ($\phi = 50\%$) est bien conservée lors de l'extrusion, nous avons réalisé un test avec des particules de 135 μm suspendues dans le mélange PEG/eau. L'ensemble de la seringue est extrudé, et environs 10 mL, soit 1/6^e du total, sont prélevés en début et en fin de seringue pour être analysés. Chaque échantillon de suspension est pesé, puis lavé à l'eau distillé et séché, pour en peser la masse de particules. L'écart de fraction volumique constaté entre le jet extrudé et la suspension versé dans la seringue est inférieur à 1% et en partie dû à l'incertitude sur la pesée.

Les suspensions de billes de diamètre inférieur à 135 μm sont *a priori* moins sujettes aux variations de fraction volumique durant l'extrusion, car pour les écoulements visqueux qui nous concernent, les effets de migrations sont d'autant plus faibles que les particules sont petites devant les dimensions caractéristiques de l'écoulement. Au contraire, avec des

billes de $550\ \mu\text{m}$, la suspension se bloque sur les 15 derniers mL de la seringue, ce qui suggère qu'une dilution a lieu lors de l'extrusion. La pesée présentée précédemment n'a pas été réalisée pour cette suspension là, cependant, la longueur du jet à été mesurée sur l'intégralité de la vidange de la seringue jusqu'au blocage de la suspension et, hormis au moment du blocage, nous n'avons pas constaté de dérive ou de déviation significative sur la mesure de la longueur du jet produit. Pour ces billes, nous prendrons bien soin de ne pas exploiter les derniers mL de la seringue.

Le dispositif expérimental présenté ci-dessus nous permet de mesurer les grandeurs pertinentes du problème. La première de ces grandeurs est la longueur L du jet qui détermine l'espace nécessaire à la fragmentation et influe sur la taille des gouttes formées. Nous la définissons comme la plus petite longueur du jet, c'est-à-dire comme la distance entre la buse et l'extrémité du jet, immédiatement après qu'une goutte s'en détache. La deuxième grandeur d'intérêt est le volume noté Ω , qui correspond à la taille caractéristique des fragments. Nous mesurons ainsi la longueur Λ des fragments qui précise leur forme au moment où ils sont créés (voir légende figure 3.3). Enfin, nous distinguons les gouttes primaires, se détachant directement du jet, des gouttes secondaires, issue d'une re-fragmentation de goutte, déjà séparées. Ω et Λ sont mesurés pour chacune de ces sous-populations, afin de préciser la structure séquentielle de la fragmentation.

Mesure des grandeurs d'intérêt

Les grandeurs L , Ω et Λ , sont des grandeurs bien définies en moyenne mais fluctuant néanmoins d'un événements de fragmentation à l'autre. Afin de saisir à la fois la moyenne et les fluctuations, elles sont mesurées pour chaque combinaison de paramètre sur un grand nombre de gouttes (jusqu'à 300) impliquant le traitement de quelques milliers d'images, à chaque fois.

La longueur du jet L

Un grand soin ayant été apporté à l'uniformité du fond lumineux et à la prise d'image, le contour du jet est précisément obtenu à partir d'un simple seuillage des niveaux de gris des images. L'altitude de l'extrémité du jet au cours du temps est extraite et chaque événement de fragmentation primaire (*i.e.* depuis le jet) est détectés en identifiant les raccourcissement du jet.

Le volume des gouttes Ω

Le volume des gouttes est mesuré de deux manières. La première, basée sur le volume

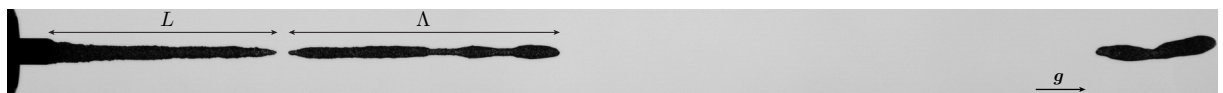


FIGURE 3.3 – Les échelles caractéristiques de la fragmentation d'un jet : sa longueur L , déterminant l'espace nécessaire à la fragmentation, et le volume Ω et la longueur Λ des gouttes, déterminant la taille et la forme des fragments.

total extrudé, ignore les fluctuations mais donne une valeur précise de la moyenne. La seconde, basée sur une mesure individuelle des gouttes, est un peu moins précise mais permet de mesurer les fluctuations.

La première méthode détermine le volume moyen des gouttes à partir de la connaissance du débit imposé à la buse et du comptage des gouttes créées pendant le temps de comptage.

Pour la seconde, nous supposons que chaque section de la goutte, d'épaisseur 1 pixel, est à symétrie de révolution. Ainsi, le volume total d'une goutte est obtenu en sommant toutes les tranches de volume $1\text{px} \times \pi h^2/4$, où h est le diamètre apparent de la goutte.

La seconde méthode est validée par la première ; pour un débit, présenté sur la figure 3.4, nous constatons un écart relatif d'environ 5% entre les deux méthodes de mesure.

La longueur des gouttes Λ

La longueur demande systématiquement de détecter chaque goutte nouvellement formée. Elle est déterminée pour chaque goutte en mesurant la distance entre les deux extrémités d'une nouvelle goutte.

Mesure de l'étirement du jet

Les mesures rhéologiques de la partie 3.2 et plus généralement la compréhension de la fragmentation demandent de mesurer l'étirement du jet avant qu'il ne se fragmente mais aussi au cours du pincement. Trois méthodes différentes ont été utilisées selon que l'étire-

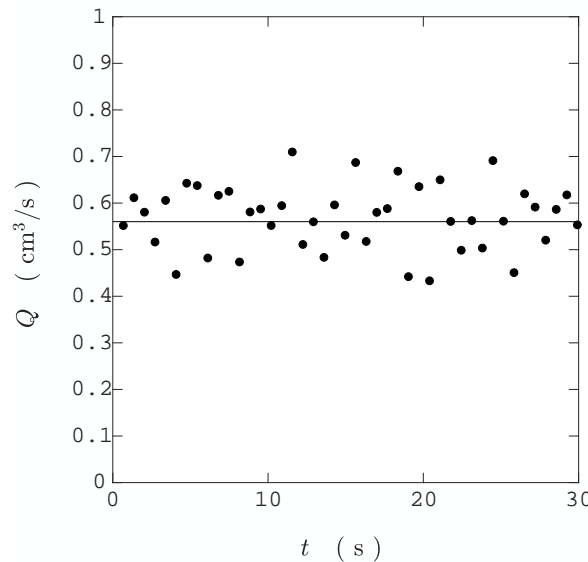


FIGURE 3.4 – Validation de la méthode de mesure du volume chaque goutte. Le débit moyen déduit du volume de chaque goutte (\bullet) est égal à moins de 2% près au débit nominal d'extrusion $\pi u_0 h_0^2/4$ (—) imposé par le piston ($d = 135 \mu\text{m}$, $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $u_0 = 0.08 \text{ m/s}$).

ment est stationnaire ou transitoire, mais aussi par redondance, à des fins de vérification.

Méthode 1

Cette méthode suppose un écoulement stationnaire et un jet localement cylindrique. Elle impose de connaître le débit mais ne nécessite pas de traceur contrairement aux deux méthodes suivantes.

La conservation du débit dans le jet, $u(z)h(z)^2 = u_0h_0^2$, de l'épaisseur en fonction de l'altitude du jet $h(z)$ permettent de déduire la vitesse $u(z) = u_0h_0^2/h(z)^2$ le long du jet. Un profil d'épaisseur moyen est obtenu en faisant la moyenne quadratique temporelle $\sqrt{\langle h^2 \rangle_t}$ sur 10 profils d'épaisseur décorrélés en temps (voir la superposition de 10 profils typiques sur la figure 3.5b). Cette méthode présente l'inconvénient de n'être valable que pour des jets stationnaires. Elle est cependant robuste pour toute la partie du jet qui n'est pas affectée par les fragmentations qui surviennent en aval. Un profil de vitesse typique extrait par cette méthode est présenté sur la figure 3.6.

Méthode 2

C'est une méthode de suivi de traceurs, ou PIV (pour Particle Image Velocimetry), utilisée pour un écoulement supposé stationnaire, ce qui permet d'obtenir une grande précision en exploitant le signal d'un grand nombre de paires d'images statistiquement identiques. Elle est basée sur la persistance des corrugations à la surface des jets de suspensions, qui servent alors de traceurs des déplacements de l'interface du jet. Cette méthode ne peut donc pas être utilisée pour les jets purement liquides.

Elle est utilisée sur un ensemble d'environ 500 à 1000 images successives. Pour chacune des images, une image unidimensionnelle est construite en moyennant l'intensité des pixels à chaque altitude z . Cette opération est répétée pour toutes les images de la séquence. Enfin, une image est reconstruite en accolant chacune des images unidimensionnelles, formant ainsi un spatio-temporel de la séquence (voir figure 3.5c). À partir de cette image finale, le déplacement vertical $\Delta z(z)$ pendant le temps inter-image Δt est déterminé avec une précision sub-pixel par corrélation et interpolation de la corrélation, donnant $u(z) \equiv \Delta z(z)/\Delta t$. (voir figure 3.5d).

Méthode 3

Cette méthode est utilisée pour les écoulements transitoires des pincements (voir figure 3.5a).

Il s'agit d'une méthode de PIV unidimensionnelle. Elle demande une haute fréquence de prise de vue et que l'interface du jet présente une quantité suffisante de corrugations. Les deux images successives sont découpées en « boîtes » dont les dimensions sont fixées de manière à contenir plusieurs diamètres de bille. La vitesse instationnaire $u(z, t)$ est obtenue par les méthodes de corrélation et d'interpolation. Cette technique sera utilisée pour suivre l'évolution de la vitesse au cours d'un événement de fragmentation.

La figure 3.6 compare les champs de vitesse obtenus par les méthodes 1 et 2, auxquels sont associés la photographie d'un des profils d'épaisseur. Bien que la méthode 1 est appliquée uniquement à des images pour lesquelles le jet est continu sur l'ensemble du champ de mesure, tandis que la méthode 2 inclue toutes les images de la séquence, on constate que les deux méthodes sont en très bon accord sur tout le profil du jet, ce qui valide les deux méthodes. Loin de la buse, et donc près des lieux de fragmentations, les

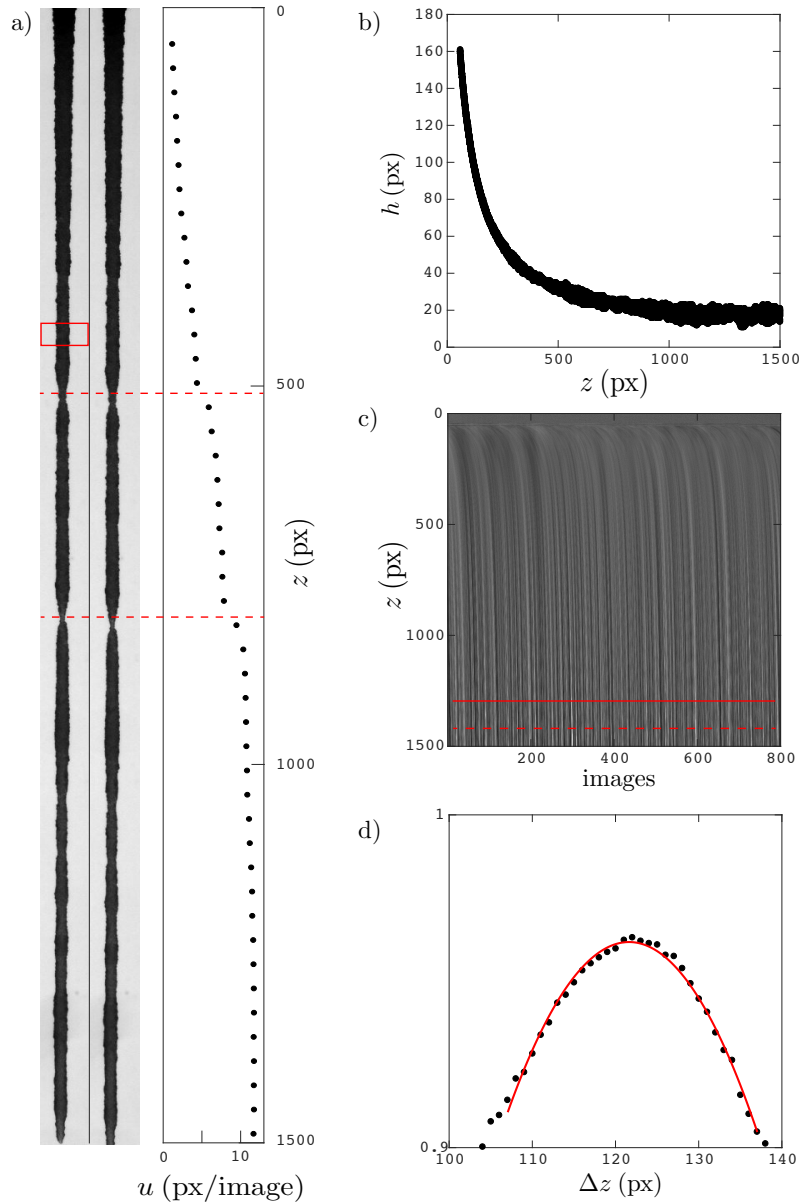


FIGURE 3.5 – a) Deux images successives d’un jet de suspension ($d = 135 \mu\text{m}$, $\eta_0 = 2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $u_0 = 0.05 \text{ m/s}$) où les corrugations de l’interface sont utilisées comme traceur de l’écoulement. Le cadre rouge indique la taille de la boîte utilisée pour la PIV. Les lignes pointillées servent de repère pour identifier les deux lieux de pincement. À ce couple d’images sont associées les mesures de PIV faites le long du jet. Droite : Pour un jet de suspension ($d = 80 \mu\text{m}$, $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $u_0 = 0.012 \text{ m/s}$), b) superposition de 10 profils d’épaisseur de jet. c) représentation spatio-temporelle du jet sur 800 images. La ligne pointillée correspond à l’altitude où est translatée la ligne de pixels (surlignée en rouge) pour un pas de temps de Δt ($\Leftrightarrow 1 \text{ px}$). d) fit parabolique (—) du pic de corrélation (\bullet) déterminé pour la ligne de pixels du spatio-temporel.

deux profils de vitesse différents car l'hypothèse de stationnarité de la méthode 1 est violée autour des lieux de fragmentation.

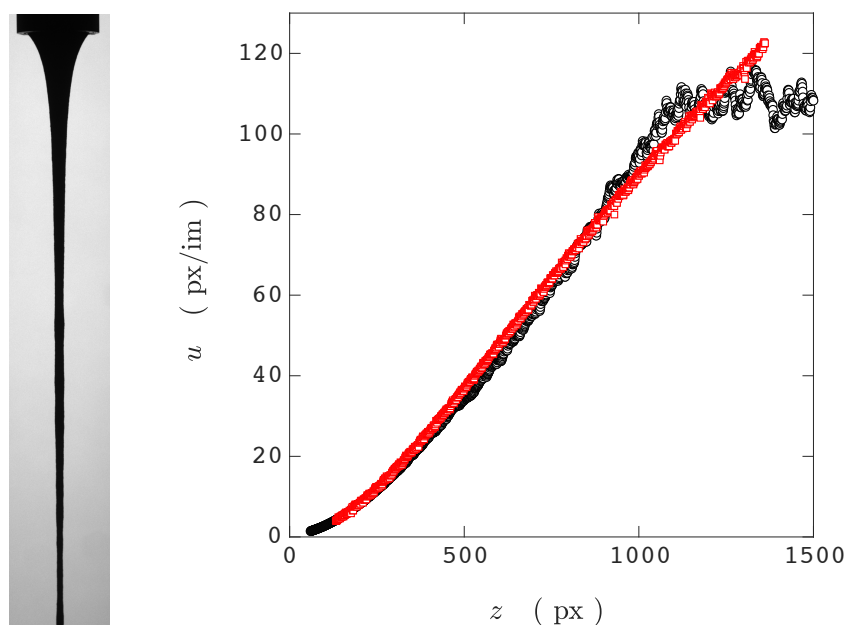


FIGURE 3.6 – Gauche : Image typique d'un profil de jet de suspension ($d = 80 \mu\text{m}$, $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $u_0 = 0.08 \text{ m/s}$, $h_0 = 11.6 \text{ mm}$) dont sont tirées les profils de vitesse présentés à droite. Droite : profil de vitesse extrait de $u(z)$ (méthode 1) et moyenné sur 10 profils d'épaisseur (\circ) et obtenues par corrélation sur 800 images successives (méthode 2) (\square).

Rhéologie de cisaillement

Afin de servir d'étalon à la mesure de viscosité élongationnelle qui sera discutée dans la partie 3.2, il est nécessaire de mesurer la viscosité des suspensions dans un écoulement de référence. Nous choisissons naturellement un écoulement de cisaillement pur.

La viscosité d'un liquide peut être déterminée en rhéologie de cisaillement à l'aide d'un rhéomètre plan-plan (un disque tournant cisailant l'entrefer qui le sépare d'une plaque parallèle). Si cette méthode est robuste pour les liquides newtoniens ou des suspensions de particules dont la taille est de l'ordre ou inférieure à $10\ \mu\text{m}$, elle est inadéquate pour des suspensions de particules de taille supérieure. En effet, en rhéologie plan-plan traditionnelle, le confinement latéral de l'échantillon est assuré par la tension de surface, ce qui limite l'entrefer à la longueur capillaire soit, en pratique, 1 mm. Pour pouvoir utiliser nos particules d'une centaine de μm en assurant un entrefer beaucoup plus grand que les particules, nous avons employé un dispositif modifié utilisant le disque tournant d'un rhéomètre immergé dans un grand volume de suspension.

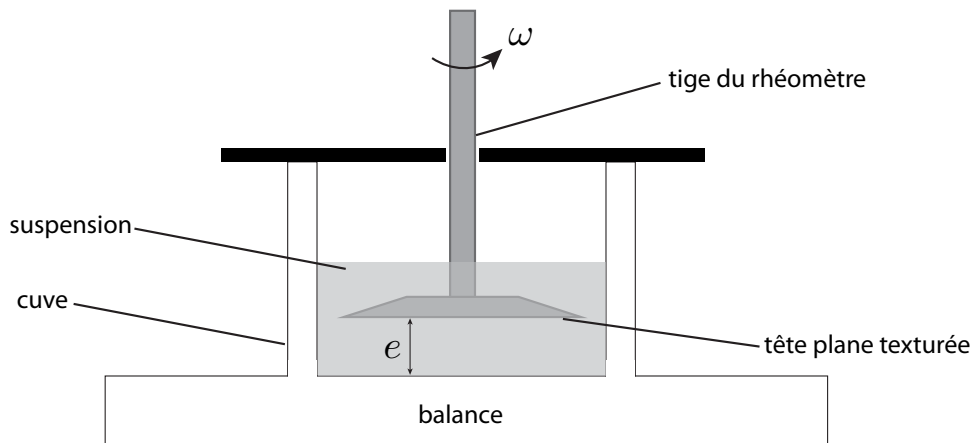


FIGURE 3.7 – Schéma du rhéomètre utilisé pour déterminer la viscosité de cisaillement des suspensions.

Le dispositif de mesure est schématisé sur la figure 3.7. La suspension est versée dans une cuve dont le fond est rainuré et cisailée par un disque texturé de rayon $R = 25\text{mm}$ fixé à la tige du rhéomètre la vitesse de rotation ω imposant l'épaisseur e de l'entrefer, est défini comme la distance entre le sommet des rainures, et du fond de la cuve (de diamètre interne 62 mm). Sur ce dispositif, à la fois ω et e seront variés. La valeur du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, prise comme étant celle imposée à $3R/4$ de l'axe (*i.e.* $\dot{\gamma} = 3\pi R\omega/2e$). À ω et e fixés, le rhéomètre mesure le couple M (figure 3.8a) exercé sur le disque tournant. Ce couple est la seule grandeur physique que nous pouvons extraire pour une mesure. Pour vérifier et calibrer notre dispositif, nous mesurons dans un premier temps le couple exercé à différents ω pour deux liquides newtoniens dont la viscosité est déterminée indépendamment au rhéomètre, c'est-à-dire un rhéomètre plan-plan avec un entrefer de 1 mm. L'entrefer est varié de 5 mm à 9 mm et la vitesse de rotation ω est variée de 0.1 à environ

10 tours/minute. Nous veillons par ailleurs à ce que l'entrefer puisse contenir au moins 20 diamètres de particules afin de ne pas biaiser les mesures par des effets de confinement (voir section 1.2.5). De plus, les mesures sont toujours réalisées avec la même masse de liquide pour autoriser la comparaison.

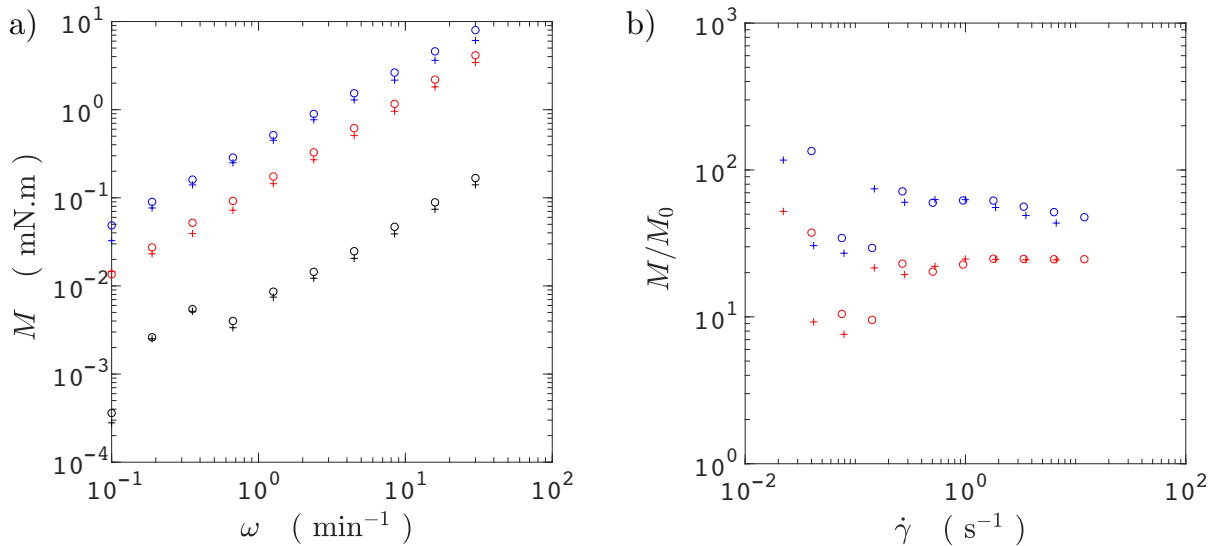


FIGURE 3.8 – a) Couple de cisaillement en fonction de la vitesse de rotation du disque pour deux liquides newtonien ($\eta_0 = 2.88 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (en rouge) et $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (en noir)) et une suspension de particules ($d = 80 \mu\text{m}$, $\phi = 50\%$) dans un liquide newtonien ($\eta_0 = 0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) (en bleu). Pour $e = 9 \text{ mm}$ (croix) et $e = 5 \text{ mm}$ (cercles). b) Couple relatif à celui du liquide newtonien de référence ($\eta_0 = 0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) en fonction du taux de cisaillement typique dans l'entrefer.

Connaissant la viscosité d'un liquide newtonien η_0 et le couple $M_0(\dot{\gamma})$ mesuré, nous pouvons remonter en tenant compte des faibles nombres de Reynolds à la viscosité η d'un autre liquide newtonien ou d'une suspension par :

$$\eta = \frac{M}{M_0} \eta_0. \quad (3.1)$$

Les liquides newtoniens utilisés pour la calibration ont des viscosités $\eta_0 = 2.88 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ et $0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$, soit un ratio de viscosité de 22. Avec notre dispositif, nous trouvons que le premier liquide est 24 fois plus visqueux que le second, indépendamment de la valeur de l'entrefer, soit un écart relatif d'environ 10% avec la mesure en rhéologie plan-plan. Ceci confirme donc la robustesse du protocole de mesure.

Dans le cas de la suspension, la pente de $\log(M)$ en fonction de $\log(\omega)$ est légèrement inférieure à 1, ce qui signifie que, comme observé pour des suspensions à $\phi = 50\%$ dans le chapitre 2, la suspension est légèrement rhéo-fluidifiante. L'indépendance de la mesure de viscosité à la valeur de l'entrefer confirme néanmoins la fiabilité de la mesure.

3.2 Étirement et rhéologie élongationnelle

Sous gravité un jet s'étire et s'amincit. Pour un jet élané ($\partial h/\partial z \ll 1$) cet étirement prend la forme d'un écoulement élongationnel uni-axial. Dans tous les cas, l'étirement affecte directement la fragmentation car le taux de pincement augmente à mesure que le diamètre du jet diminue. Nous analysons donc ici l'étirement gravitaire d'un jet de suspension, d'une part, comme prélude à l'étude de la fragmentation, mais aussi comme une étude à part entière permettant d'obtenir une mesure de la rhéologie élongationnelle des suspensions, pour laquelle peu de mesures sont disponibles.

3.2.1 Cas newtonien

Théorie faible pente

La dynamique d'un jet de liquide newtonien est formellement décrite par l'équation de Navier-Stokes associée aux conditions aux limites amonts, avalés et à l'interface. Pour un jet élané et axisymétrique l'approximation unidimensionnelle de type Saint-Venant, dite de faibles pentes, permet une description très simplifiée mais très fidèle de tous les aspects de la dynamique [28, 88], et donc du profil d'un jet gravitaire.

Considérons un jet newtonien axisymétrique, dans le vide, de diamètre $h(z)$ et dont le champ de vitesse est $\mathbf{U} = (v \cdot \mathbf{e}_r, 0 \cdot \mathbf{e}_\theta, u \cdot \mathbf{e}_z)$. L'hypothèse de faible pente (jet allongé) implique une échelle de taille longitudinale grande devant l'échelle de taille radiale (*i.e.* $z \gg r$ et $\partial h/\partial z \ll 1$) et une vitesse longitudinale grande devant la vitesse radiale ($u \gg v$). L'indépendance à θ assure, quant à elle, l'axisymétrie de l'écoulement.

Par raison de symétrie, la vitesse se développe aux premiers ordres en r selon

$$\begin{cases} u &= u_{(0)}(z) + u_{(2)}(z)r^2 + \dots \\ v &= v_{(1)}(z)r + v_{(3)}(z)r^3 + \dots \end{cases} \quad (3.2)$$

La condition d'incompressibilité $\partial_r(rv)/r + \partial_z u = 0$ impose alors :

$$v_{(1)} = -\frac{\partial_z u_{(0)}}{2}. \quad (3.3)$$

Toujours par raison de symétrie, la matrice des contraintes s'écrit

$$\begin{pmatrix} -p + \tau_{rr} & 0 & \tau_{zr} \\ 0 & -p + \tau_{\theta\theta} & 0 \\ \tau_{rz} & 0 & -p + \tau_{zz} \end{pmatrix}, \quad (3.4)$$

où p est la pression et τ_{rr} et τ_{zz} sont les contraintes normales dans les principales directions de l'écoulement. La condition de contrainte tangentielle nulle à l'interface associée à $\partial h/\partial z \ll 1$ impose $\tau_{rz} = \tau_{zr} = 0$ en $r = h/2$. L'équation de Navier-Stokes intégrée sur une section de jet prend alors la forme :

$$\rho \left[\frac{\partial}{\partial t} \int u_{(0)} r dr + \frac{\partial}{\partial z} \int u_{(0)}^2 r dr \right] = \frac{\partial}{\partial z} \left[\int (-p + \tau_{zz}) r dr + 2h\sigma \right] + \rho g, \quad (3.5)$$

laquelle, associée à la conservation du flux $h_t^2 + (h^2u)_z = 0$, donne

$$\frac{\partial u_{(0)}}{\partial t} + u_{(0)}\partial_z u_{(0)} = \frac{1}{\rho h^2} \frac{\partial}{\partial z} \left[(h^2(-p + \tau_{zz})) + 2\sigma h \right] + g. \quad (3.6)$$

Par ailleurs, l'hypothèse de faible pente impose $\partial_r p \ll \partial_z p$. Au premier ordre, la pression est donc uniforme sur la section. L'équation de Laplace pour le saut de contrainte normale à l'interface prescrit $-p + \tau_{rr} = \sigma\kappa$, où κ est la courbure de l'interface du jet. Dans la limite d'un jet élané, $\partial^2 h / \partial^2 z \ll 1/h$, et la courbure est $\kappa \simeq 2/h$. L'équation (3.6) devient donc :

$$\frac{\partial u_{(0)}}{\partial t} + u_{(0)}\partial_z u_{(0)} = \frac{\sigma\partial_z \kappa}{\rho} + \frac{\partial_z [h^2(\tau_{zz} - \tau_{rr})]}{\rho h^2} + g. \quad (3.7)$$

Pour un liquide newtonien les contraintes visqueuses sont

$$\begin{cases} \tau_{rr} &= 2\eta\partial_r v \simeq 2\eta v_{(1)} = -\eta\partial_z u(0) \\ \tau_{zz} &= 2\eta\partial_z u \simeq 2\eta\partial_z u_{(0)}. \end{cases} \quad (3.8)$$

En simplifiant la notation $u_{(0)}$ par u , on obtient finalement l'équation d'évolution unidimensionnelle d'un jet newtonien en présence de gravité, associée à l'équation intégrée de conservation de la matière [20, 21, 28, 82] :

$$u_t + uu_z = \frac{\sigma\kappa_z}{\rho} + \frac{3\nu}{h^2}(h^2u_z)_z + g, \quad h_t^2 + (uh^2)_z = 0, \quad (3.9)$$

où le préfacteur 3, manifestant les différences de contraintes normales visqueuses, c'est-à-dire-newtoniennes, est appelé facteur de Trouton [89].

L'équation générale d'un jet axisymétrique à surface libre établie, appliquons la au cas d'un jet stationnaire (*i.e.* $u_t = 0$ et $h_z = 0$) dans la limite où la tension de surface est négligeable (*i.e.* $\sigma\kappa_z/\rho = 0$). Sous ces conditions, l'équation (3.9) s'écrit

$$uu_z = \frac{3\nu}{h^2}(h^2u_z)_z + g. \quad (3.10)$$

L'équation (3.10) peut être adimensionnée en introduisant la vitesse et la longueur visco-gravitaires,

$$U = \left(\frac{3\eta}{\rho g} \right)^{1/3} \quad \text{et} \quad Z = \left(\frac{(3\eta)^2}{\rho^2 g} \right)^{1/3}, \quad (3.11)$$

au delà desquelles l'étirement du jet n'est plus limité par la viscosité mais par la chute libre, selon :

$$\tilde{u}_{\tilde{z}} = \left(\frac{\tilde{u}_{\tilde{z}}}{\tilde{u}} \right)_{\tilde{z}} + \frac{1}{\tilde{u}}. \quad (3.12)$$

Deux régimes asymptotiques d'étirement sont alors à distinguer. Pour les faibles vitesses ($u \ll U$) l'étirement est limité par la viscosité. Le terme $\tilde{u}_{\tilde{z}}$ peut être négligé, ce qui conduit à une loi de vitesse parabolique :

$$\tilde{u} = \frac{(\tilde{z} + \sqrt{2\tilde{u}_0})^2}{2}. \quad (3.13)$$

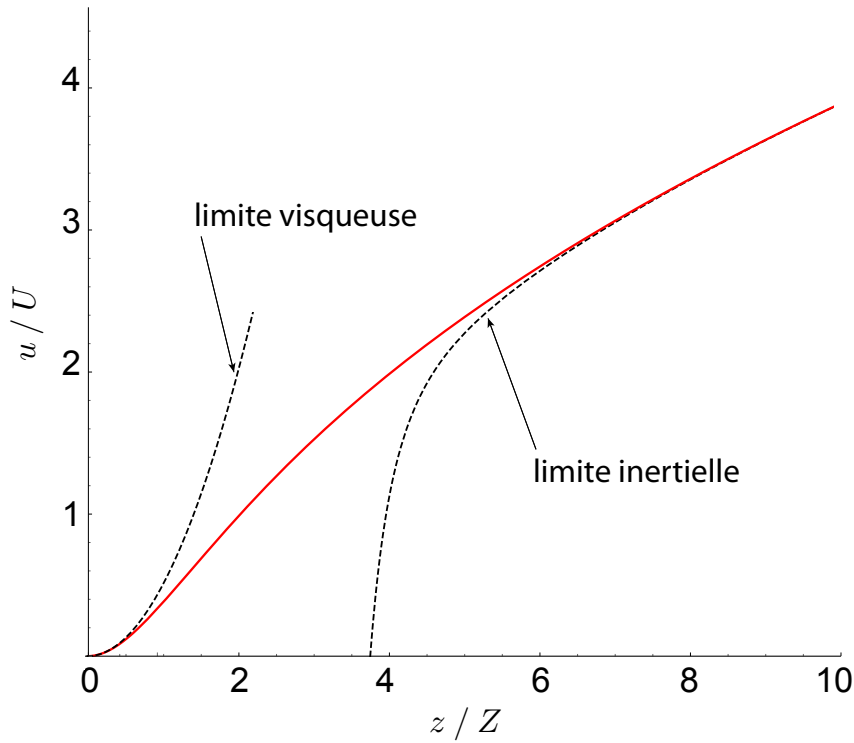


FIGURE 3.9 – Vitesse adimensionnée du jet en fonction de l’altitude adimensionnée obtenue par intégration numérique de l’équation 3.12 (—). Les courbes pointillées représentent la vitesse dans les limites visqueuse et inertielle.

À l’opposé, dans la limite inertielle ($u \gg U$), le terme visqueux $(\tilde{u}_z/\tilde{u})_z$ dans (3.12) peut être négligé et la vitesse devient

$$\tilde{u} = \sqrt{2\tilde{z} + \tilde{u}_0^2} \quad \text{ou} \quad \tilde{u} = \sqrt{2(\tilde{z} + 2.9)}, \quad (3.14)$$

pour une vitesse à la buse suffisamment grande ($u_0 \gg U$) ou pour une faible vitesse à la buse ($u_0 \ll U$). Le coefficient 2.9, correspondant à une hauteur de décalage $2.9Z$, est obtenu par intégration numérique de l’équation (3.12). La vitesse de chute libre en $\sqrt{2gz}$ est bien retrouvée loin de la buse.

Dans le premier régime ($u \ll U$), l’étirement dépend de la rhéologie élongationnelle du jet. Une mesure de celle-ci peut donc être obtenue en mesurant l’amincissement du jet.

Validation de la mesure élongationnelle

Afin de valider notre protocole de mesure une expérience est réalisée avec des jets de liquides newtoniens dont la viscosité est mesurée indépendamment, à l’aide d’un rhéomètre plan-plan conventionnel. Le profil longitudinal de vitesse est mesuré à partir de l’évolution du diamètre du jet et de la donnée du débit (méthode 1). Le régime d’étirement visqueux est alors ajusté par la loi parabolique 3.13 ce qui donne une mesure de U et Z , et donc, de la viscosité η , puisque ρ et g sont connus indépendamment.

La figure 3.10 montre l'ajustement obtenu pour deux liquides newtoniens de viscosité $\eta_0 = 0.61 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ et $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (mesurées au rhéomètre à $23 \text{ }^\circ\text{C}$). Pour une vitesse d'extrusion donnée, la stabilité des jet formés (voir les photographies sur la figure 3.10) étant accrue par des buses de gros diamètre [52], nous utilisons une buse dont le diamètre intérieur est de $h_0 = 11.6 \text{ mm}$. Suivant la procédure de la méthode 2 (voir §3.1), nous obtenons, à partir de 10 profils indépendants, le champ de vitesse tout au long du jet, tracé sur la figure 3.10. L'ajustement au profil de vitesse théorique, résultat de l'intégration numérique de (3.12), fournit une mesure directe de η_0 (connaissant ρ , qui ici vaut 1050 kg/m^3). Par

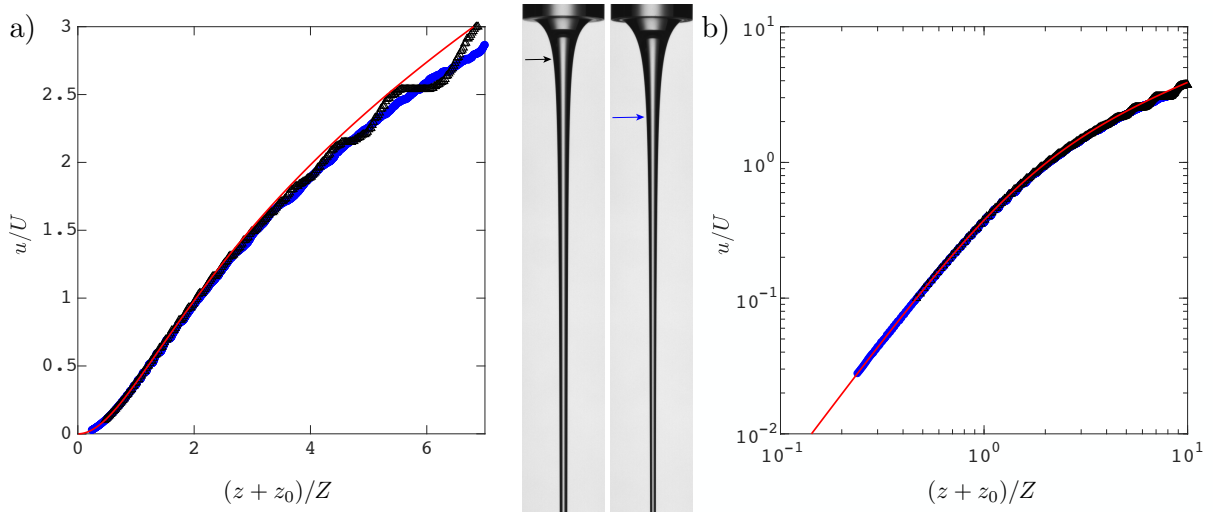


FIGURE 3.10 – Vitesse adimensionnée du jet en fonction de l'altitude adimensionnée pour deux jets de viscosités $0.61 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (Δ) et $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (\bullet) mesurées sous cisaillement et ajustées par le profil théorique (—) en coordonnées linéaires (a) et logarithmiques (b). Centre : images des jets (de gauche à droite $\eta_0 = 0.61 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ et $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$). La flèche indique pour chaque liquide l'altitude $z = Z$. La vitesse initiale est $u_0 = 0.02 \text{ m/s}$ et $u_0 = 0.01 \text{ m/s}$, respectivement.

cet ajustement nous déduisons les valeurs $\eta_0 = 0.87 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ et $\eta_0 = 3.30 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. Le ratio de ces viscosités avec la viscosité de cisaillement est donc 1.43 et 1.14 respectivement.

Cet écart est lié à la valeur de la longueur visco-gravitaire. Pour le moins visqueux, $Z \simeq 0.6h_0$ et $Z \simeq 1.6h_0$ pour le plus visqueux. Or, nous avons vu au chapitre 1 que le profil de vitesse uniforme sur une section soutendant l'équation 3.12 s'établit sur une distance $\sqrt{3}h_0/2 \simeq 0.87h_0$ depuis la buse [84]. De plus, la vitesse d'extrusion du premier liquide doit être plus élevée que pour un liquide plus visqueux pour obtenir expérimentalement un jet stable : la courbe théorique est alors ajustée sur une gamme plus réduite de points dans le régime visqueux. Pour obtenir une mesure fiable de la viscosité élongationnelle, nous veillerons donc à respecter les points suivants :

- La vitesse u_0 doit être petite devant U , pour pouvoir mesurer η . Nous vérifions toujours $u_0 \lesssim 0.1U$.
- La viscosité effective de cisaillement de la suspension doit être suffisamment élevée pour qu'à la distance Z depuis la sortie de la buse, le profil d'écoulement uniforme caractéristique d'un jet, soit établi. Nous vérifions toujours $Z \gtrsim h_0$.

- La fragmentation doit intervenir assez loin pour que l'amincissement soit stationnaire. Nous vérifions toujours $L \gtrsim Z$.
- L'amincissement h^2/h_0^2 sur lequel la mesure est effectuée doit être grand devant la contraction due à la relaxation du profil ($h^2/h_0^2 \leq 3/4$).

Toutes ces précautions imposent que la viscosité de la suspension soit d'au moins $\simeq 1.5 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. La vitesse initiale à la buse sera alors $u_0 \sim 0.01 \text{ m/s}$.

3.2.2 Cas des suspensions

La méthode de mesure de la viscosité élongationnelle ayant été validée dans le cas d'un liquide visqueux newtonien, nous pouvons désormais l'appliquer au cas d'une suspension. Nous choisissons de réaliser la mesure pour deux suspensions différentes : une suspension de billes de diamètre $10 \mu\text{m}$ et une suspension de billes de diamètre $80 \mu\text{m}$ en suspension dans un liquide de viscosité $0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. Pour ce faire, une quantité d'environ 100 mL de suspension est préparée dont 60 mL serviront à capturer plusieurs profils de jets au cours de la vidange de la seringue. Les 40 mL restant sont utilisés pour réaliser une mesure de viscosité de cisaillement à l'aide du rhéomètre présenté à la section 3.1.

Les profils de ces deux jets de suspensions sont présentés sur la figure 3.11. Les deux jets formés par les suspensions de billes de $10 \mu\text{m}$ et $80 \mu\text{m}$ présentent une interface lisse à l'échelle d'observation. Cependant, alors que la section est très régulière sur l'intégralité du champ d'observation pour le jet de billes de $10 \mu\text{m}$, elle l'est beaucoup moins pour les billes de $80 \mu\text{m}$. Pour ces dernières, la partie du jet située en bas de l'image est très modulée par les fragmentations qui ont lieu juste en-dessous du cadre de l'image.

Les deux champs de vitesse sont tracés sur la figure 3.12. Comme déjà remarqué qualitativement sur les photographies, le profil de vitesse croît très régulièrement, depuis le régime visqueux jusqu'au régime inertiel alors que pour $d = 80 \mu\text{m}$, le profil de vitesse, qui suit lui aussi la prédiction théorique dans le régime visqueux et la transition visco-inertielle, subit une cassure abrupte aux alentours de $z = 2Z$. Malgré ces perturbations du profil loin de la buse, nous pouvons, ajuster précisément les profils expérimentaux sur la courbe théorique newtonienne comme le montre la représentation en coordonnées logarithmiques. Ceci montre que l'étirement des jets de suspension suit bien la même loi que celle d'un jet newtonien. Il est donc possible d'extraire une viscosité effective de l'écoulement élongationnel du jet. Les valeurs de η_e obtenues sont renseignées dans la table 3.1, accompagnées des valeurs mesurées sous cisaillement. obtenues sur une gamme de taux de cisaillement $1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 10 \text{ s}^{-1}$ équivalents aux taux d'élongation $-u\partial_z h/h$ que subit le jet. Sur cet intervalle de $\dot{\gamma}$, nous observons sous cisaillement, de la même manière qu'au chapitre 2, un comportement légèrement rhéo-fluidifiant. L'erreur qui accompagne chacune des mesures de η_s sont le reflet de ce comportement. Les valeurs mesurées en cisaillement forment les ratios $\eta_e/\eta_s = 1.2 \pm 1.0$ et $\eta_e/\eta_s = 1 \pm 1$ pour $d = 10 \mu\text{m}$ et $80 \mu\text{m}$ respectivement. L'enseignement de cette comparaison est donc double :

- D'une part, la similarité des deux viscosités obtenues confirme les résultats du chapitre 2 et les simulations de Seto et *al.* [83] rapportant un rapport de Trouton égal au cas newtonien jusqu'à la fraction volumique critique.

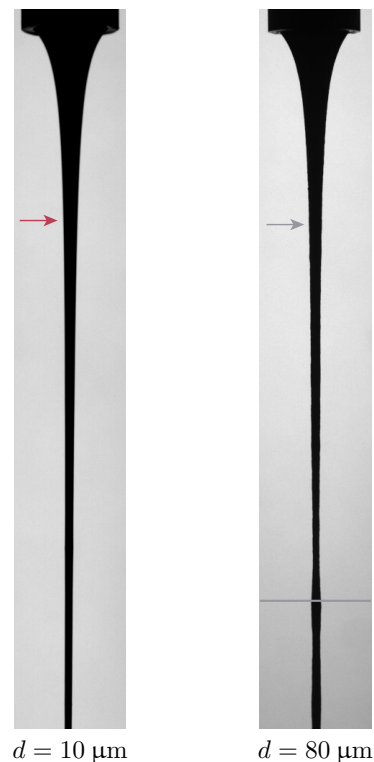


FIGURE 3.11 – Jet de billes de diamètre $10\ \mu\text{m}$ (gauche) et de billes de diamètre $d = 80\ \mu\text{m}$ (droite) en suspension à $\phi = 50\%$ dans un liquide de viscosité $\eta_0 = 0.13\ \text{Pa} \cdot \text{s}$. Les flèches indiquent la distance $z = Z$ et la ligne grise matérialise la distance jusqu'à laquelle le profil de vitesse représenté sur la figure 3.12 est mesuré.

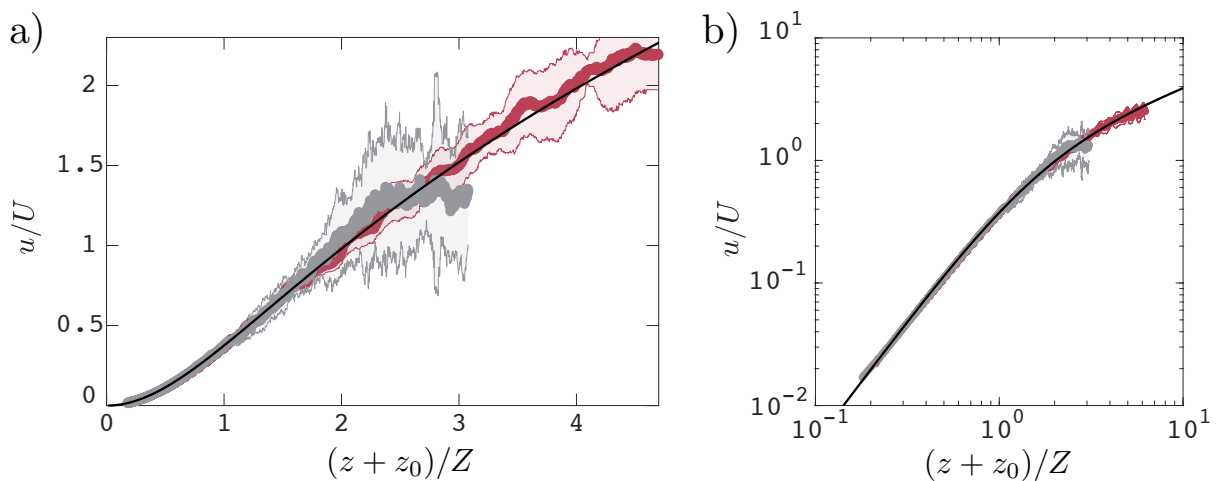


FIGURE 3.12 – Vitesse adimensionnée du jet en fonction de l'altitude adimensionnée pour $d = 10\ \mu\text{m}$ (●) et $d = 80\ \mu\text{m}$ (●) ajustée par le profil théorique (—). Les barres d'erreurs correspondent à l'écart type sur un ensemble de 10 profils décorrélés.

- D'autre part nous pouvons considérer dans la suite que l'étirement du jet avant la manifestation des effets discrets est le même que celui d'un liquide newtonien de même

viscosité de cisaillement.

3.3 Longueur du jet

3.3.1 Observations et mesures

Comme nous l'avons évoqué en introduction, l'ajout d'une grande quantité de particules dans un jet visqueux, peut raccourcir significativement le jet, contrairement à ce qu'une approche de type milieu effectif laisse présager.

La figure 3.13 illustre le cas particulier d'une suspension de billes de $135\ \mu\text{m}$ dans un liquide de viscosité $0.13\ \text{Pa}\cdot\text{s}$, extrudée d'une buse à la vitesse initiale $u_0 = 0.14\ \text{m/s}$. Parmi les quelques centaines de fragmentations que comporte l'expérience, huit événements non corrélés (*i.e.* les brisures ne se succèdent pas l'une l'autre) sont présentés. Contrairement à un jet de liquide newtonien, qui s'affine longuement avant de se fragmenter, l'exemple illustré sur la figure montre un jet qui se brise sur une courte distance. Pour chaque fragmentation du jet (ignorant donc les éventuelles refragmentation des gouttes, voir section 3.5), nous mesurons la longueur L entre l'extrémité de la buse et le lieu de fragmentation.

La figure 3.15 présente l'évolution de L au fil des fragmentations successives pour des conditions d'extrusion constantes. La longueur du jet est en moyenne constante, mais elle fluctue de typiquement 30% autour de cette moyenne. Si nous pouvons voir apparaître une frontière très nette pour la longueur minimale, à l'opposé, de très longs jets peuvent être formés. Pour ces rares événements, la longueur du jet peut être le double de la longueur moyenne mesurée. La fragmentation d'un jet de suspension se présente donc comme un phénomène fluctuant, probablement lié au caractère désordonné d'une suspension.

Au delà de cette influence modérée du désordre, la longueur du jet dépend très fortement des paramètres d'extrusion. La figure 3.14 fait qualitativement apparaître que pour une même suspension, le jet s'allonge avec la vitesse initiale u_0 (3.14a). De manière similaire, à même vitesse initiale u_0 et pour des billes de diamètre identique, accroître la viscosité du fluide suspendant a aussi pour effet d'augmenter la longueur du jet formé (3.14b). Ces deux observations indiquent que l'évolution de la longueur L évolue dans

	$d = 10\ \mu\text{m}$	$d = 80\ \mu\text{m}$
η_s (Pa · s)	5.5 ± 1.0	6.8 ± 1.0
η_s/η_0	42 ± 10	52 ± 10
η_e (Pa · s)	6.7 ± 0.3	7 ± 0.3
η_e/η_0	51 ± 3	54 ± 3

TABLE 3.1 – Tableau comparatif des valeurs de viscosité mesurées au rhéomètre (écoulement de cisaillement) et sur un jet (écoulement élongationnel) pour des suspensions de deux tailles de billes différentes dans un liquide de viscosité $\eta_0 = 0.13\ \text{Pa}\cdot\text{s}$.

le même sens que pour un liquide newtonien. En revanche, la spécificité des suspensions apparaît clairement lorsque la taille d des particules est variée à u_0 et η_0 constants, comme illustré sur la figure 3.14c. Cette figure montre que la longueur du jet diminue en augmentant le diamètre des billes. Cette tendance, inexplicable par une approche de milieu effectif, laisse bien entrevoir la manifestation d'effets de taille finie dans le processus de fragmentation des jets.

De manière quantitative, la figure 3.15 reporte les mesures systématiques de la longueur moyenne du jet pour différents u_0 , η_0 et d . On retrouve les tendances observées sur la figure 3.14.

La longueur mesurée croît de façon monotone avec la vitesse initiale u_0 , et ce quel que soit le diamètre des billes ou la viscosité du liquide suspendant. À u_0 et d fixés, L augmente avec la viscosité.

Pour finir, le paradoxe soulevé dans l'introduction transparait ici clairement. Si l'on se concentre sur le liquide de viscosité $2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (figure 3.15b), l'ajout de billes (ici à $\phi = 50\%$), qui a pour effet d'augmenter la viscosité effective du système, raccourcit le jet. Ceci est aussi vrai pour un liquide moins visqueux ($0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) exception faite des billes de $10 \mu\text{m}$ et $40 \mu\text{m}$ (voir figure 3.15a). Cette diminution de L par l'ajout de billes est dans certains cas spectaculaire. En effet, elle peut être, dans le cas extrême des billes de $550 \mu\text{m}$, de deux ordres de grandeurs (hormis pour les billes de $10 \mu\text{m}$).

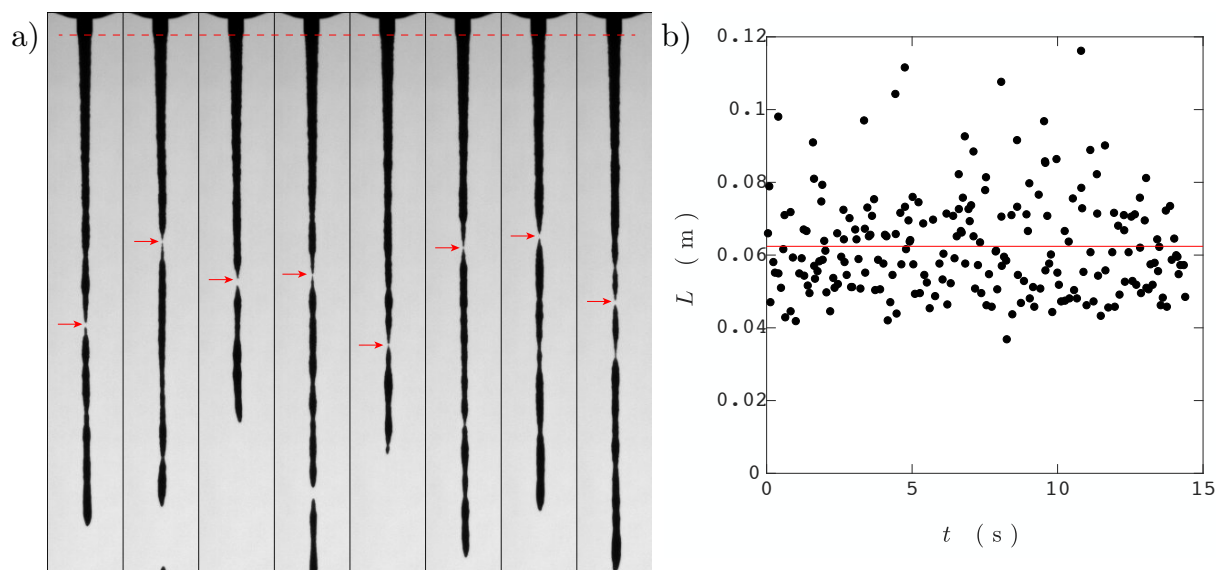


FIGURE 3.13 – a) Jet de billes ($d = 135 \mu\text{m}$) en suspension dans le mélange PEG/Eau ($\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) extrudé d'une buse de diamètre interne $h_0 = 2.95 \text{ mm}$ à une vitesse initiale $u_0 = 0.14 \text{ m/s}$. Les images, prises à différents instants durant l'extrusion, illustrent à quelle altitude les fragmentations interviennent. La longueur L est la distance entre le bas de la buse (---) et le lieu d'une fragmentation (→). b) Longueur du jet à chaque évènement de fragmentation (●) durant l'extrusion de la même suspension (même u_0), accompagné de la longueur moyenne L (—).

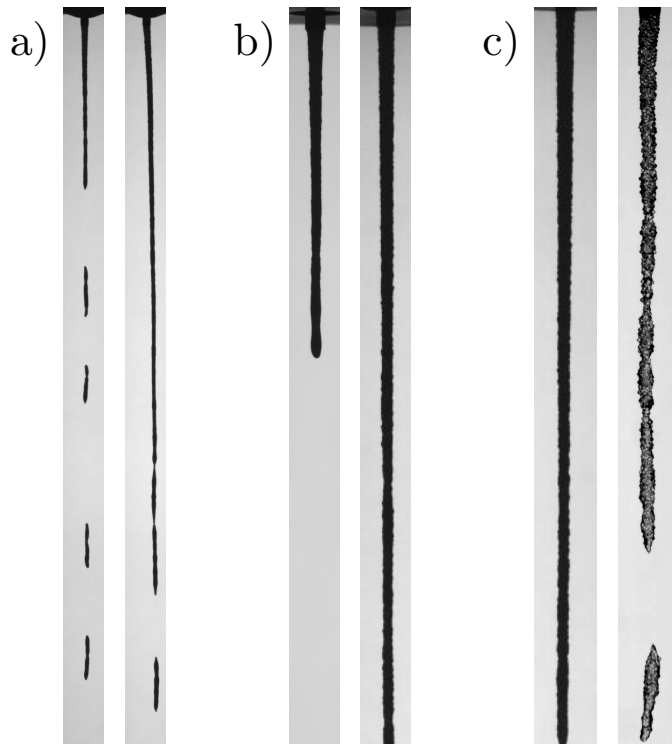


FIGURE 3.14 – a) Jets de billes ($d = 135 \mu\text{m}$) en suspension dans un liquide de viscosité $0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. La vitesse u_0 est varié de 0.14 m/s (gauche) à 0.5 m/s (droite). b) Jets de billes ($d = 135 \mu\text{m}$) en suspension dans un liquide de viscosité $0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (gauche) et $2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (droite). Les deux jets sont extrudés à la même vitesse $u_0 = 0.08 \text{ m/s}$. c) Jets de billes de diamètre $135 \mu\text{m}$ (gauche) et $550 \mu\text{m}$ (droite) en suspension dans un liquide de viscosité $2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. Les deux jets sont extrudés à la même vitesse $u_0 = 0.13 \text{ m/s}$.

Pour rationaliser ces observations, il est nécessaire de comprendre la dynamique de pincement.

3.3.2 Dynamique de pincement

La figure 3.16 montre une série d'images prises au cours d'un évènement de fragmentation d'un jet de suspension. Les quatre premières images sont prises à intervalle régulier (28 ms) tandis que les deux dernières sont celles prises juste avant la fragmentation pour illustrer la brièveté du pincement final. Les trois premières images laissent apparaître un jet dont l'allongement est relativement uniforme. À partir de la quatrième image, une zone située au milieu du jet exhibe une section bien plus réduite que tout le reste du jet. Ce défaut ne va que s'accroissant au cours du temps pour devenir le lieu de fragmentation du jet.

Pour ce même évènement de fragmentation, la figure 3.17a montre le profil d'épaisseur du jet à tout temps depuis la première jusqu'à la dernière image (à intervalle de 6 ms). La localisation de la section entame son développement à une altitude de $0.6Z$, pour quelques instants plus tard, faire pincer le jet à une altitude de $0.8Z$. En parallèle du profil

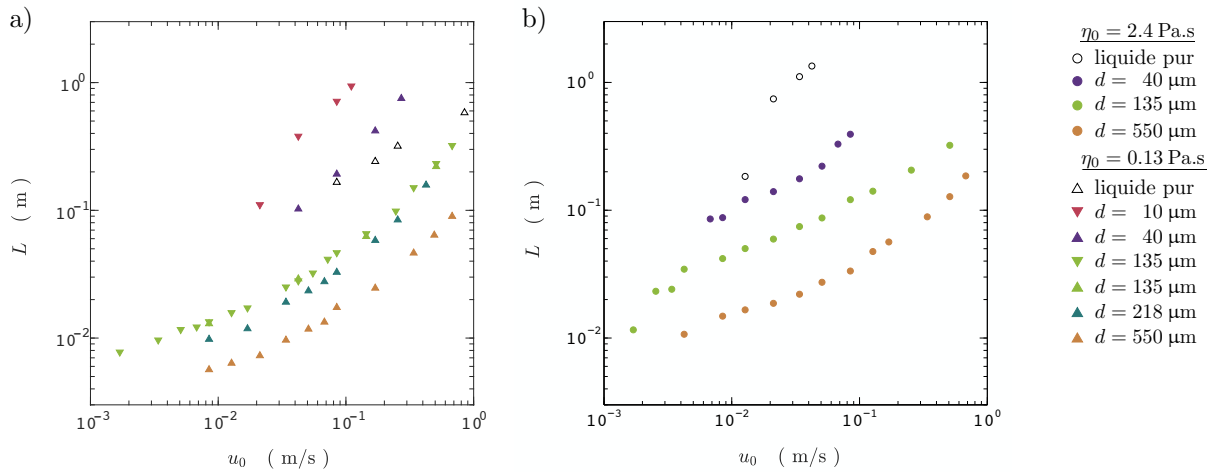


FIGURE 3.15 – Longueur moyenne L de différents jets de suspension tracée en fonction de la vitesse initiale à la buse u_0 pour des viscosités de liquides suspendants de $0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (a) et $2.4 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (b).

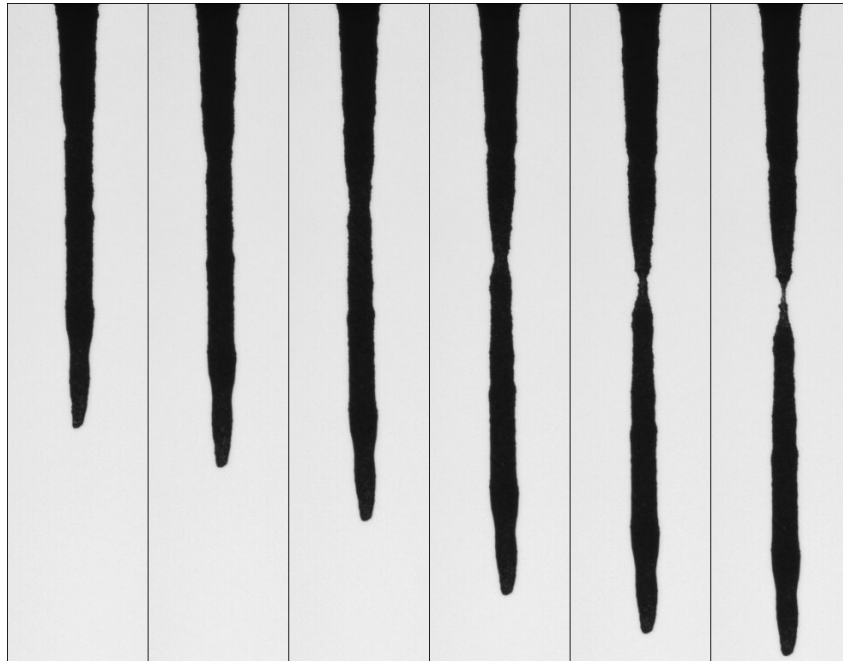


FIGURE 3.16 – Séquence de photographies d'un évènement unique de fragmentation pour un jet de billes de $135 \mu\text{m}$ de diamètre en suspension dans un liquide de viscosité $0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ($u_0 = 4.2 \text{ cm/s}$). Les deux dernières images sont prises avant la brisure. De gauche à droite, $(t_0 - t) = 103 \text{ ms}$, 75 ms , 47 ms , 19 ms , 8 ms , 2 ms , où t_0 désigne l'instant du détachement.

d'épaisseur, la figure 3.17b présente le profil de vitesse adimensionné u/U obtenu par PIV (méthode 3). Les trois premiers instants montrent une vitesse qui croît d'image en image et sur l'intégralité du jet. Les trois derniers profils de vitesse laissent clairement apparaître la localisation et l'accélération de l'étirement au niveau du pincement ($z \simeq 0.8Z$). Notons

aussi la décélération de la portion de jet en amont de la localisation, qui est de moins en moins sous tension à mesure que le pincement se développe.

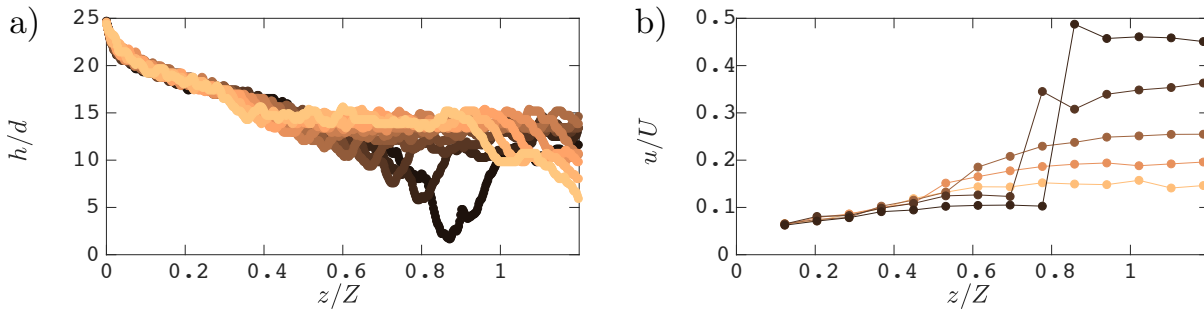


FIGURE 3.17 – a) Évolution de l'épaisseur du jet présenté sur la figure 3.16 et pour des pas de temps de 6 ms. b) Évolution du profil de vitesse pour ce même jet et aux mêmes instants avant la fragmentation que sur la figure 3.16 ($(t_0 - t) = 103$ ms, 75 ms, 47 ms, 19 ms, 8 ms, 2 ms).

Cet unique exemple de pincement révèle à quel point la fragmentation se déroule de manière soudaine. Reste à savoir si tous ces événements de brisures sont similaires et à quel point l'enclenchement de la localisation est reproductible sur plusieurs fragmentations.

Sur la figure 3.18 nous avons donc tracé l'évolution du diamètre minimal $h_{\min}(t)$ pour un grand nombre d'évènements de fragmentation. Nous observons une certaine dispersion du faisceau de courbes, conséquence de la disparité des tailles des fragments qui se détachent du jet. Cependant, pour l'ensemble des évènements, nous constatons que la diminution du diamètre minimal local subit une accélération aux alentours de $h_{\min} \simeq 10d$. Cette observation est cohérente avec l'étude menée sur le pincement d'un pont capillaire au chapitre 2. En effet, nous avons identifié que l'amincissement d'un pont capillaire suit d'abord un comportement de type milieu effectif newtonien avant de s'accélérer pour un diamètre critique $h^* = n(\phi)d$, qui dans le cas d'une suspension de billes à la fraction volumique $\phi = 50\%$ considérée ici vaut environ $10d$. Nous interprétons donc la localisation observée sur tous ces évènements comme la conséquence des effets discrets identifiés sur un pincement isolé. Nous utiliserons donc par la suite cette valeur de $h = h^* = 10d$ comme le diamètre critique en deçà duquel la suspension ne peut plus être considérée comme un milieu effectif newtonien.

3.3.3 Modélisation de la longueur d'un jet

Les observations précédentes suggèrent que la fragmentation des jets de suspensions résulte de deux effets qui semblent se manifester successivement : un amincissement progressif, similaire à un liquide effectif newtonien et une localisation brutale intervenant à un diamètre h^* . Pour rationaliser la longueur du jets observée expérimentalement et sa dépendance aux paramètres u_0 , d et η_0 , nous proposons un modèle simplifié combinant le profil d'épaisseur d'un jet visqueux newtonien et un critère empirique sur l'épaisseur du jet au moment de la brisure. Deux hypothèses sont faites :

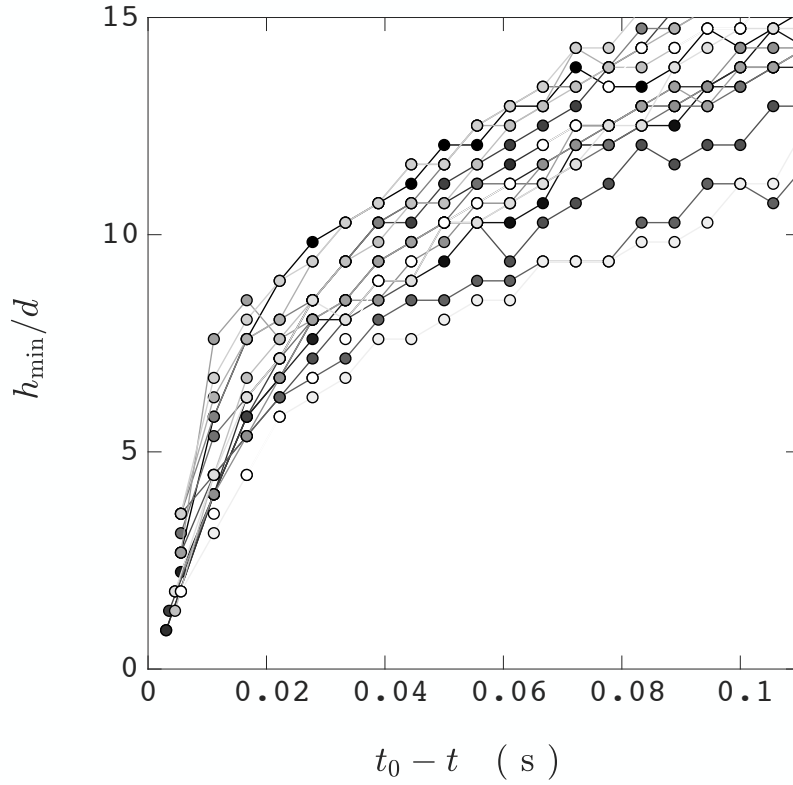


FIGURE 3.18 – Évolution temporelle du diamètre minimal local jusqu'au détachement pour 17 événements de fragmentation indépendants ($d = 135 \mu\text{m}$, $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $u_0 = 4.2 \text{ cm/s}$)

- L'état de base d'un jet de suspension est le même que celui d'un jet de liquide newtonien de viscosité effective η_e . Cette hypothèse a déjà été vérifiée dans la section 3.2 pour les cas de billes de $10 \mu\text{m}$ et $80 \mu\text{m}$. Le terme de viscosité contenu dans l'équation (3.10) est donc simplement remplacé par la viscosité effective d'une suspension. La viscosité de cisaillement n'étant pas systématiquement mesurée pour toutes les combinaisons billes/liquides, nous prenons comme viscosité effective relative, la moyenne de celle tirée de la corrélation de Krieger-Dougherty [49] et de Boyer et *al.* [12], c'est-à-dire, $\eta_e/\eta_0 \simeq 40$ (à $\phi = 50\%$). Cette valeur s'accorde bien avec les quelques valeurs que nous avons effectivement mesurées (voir chapitres 2 et 3.2).
- Sur l'état de base d'un jet visqueux, les effets discrets se manifestent lorsque la section du jet atteint un diamètre critique auquel nous considérons qu'il rompt instantanément. Ce diamètre critique est pris égal à nd . Dans le cas présent de jets réalisés à des fractions volumiques de $\phi = 50\%$, le nombre de billes critique dans le diamètre n est pris égal à 10, comme discuté plus haut. Ce critère s'écrit donc

$$h(z = L) = nd. \quad (3.15)$$

À partir des lois (3.13) et (3.14), associées au critère de rupture (3.15), nous pouvons établir une loi semi-empirique pour la longueur d'un jet extrudé pour toute vitesse initiale

u_0 . Dans la limite où l'étirement du jet est limité par la viscosité ($u_0 \ll U$), la loi (3.13)

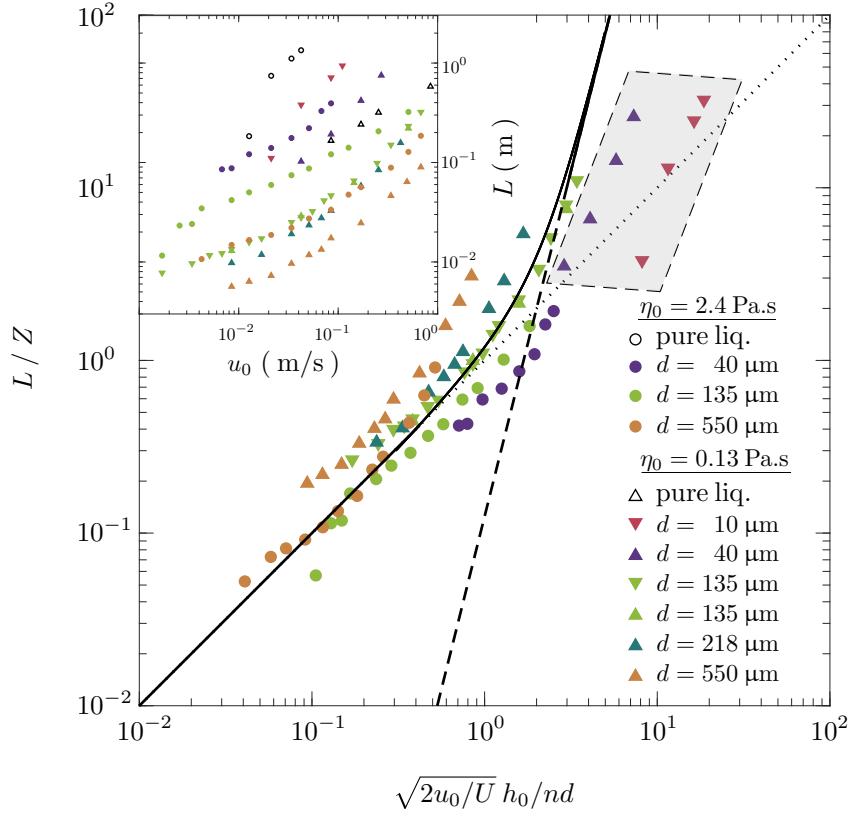


FIGURE 3.19 – Longueur adimensionnée des jets de suspension tracée en fonction de la vitesse adimensionnée pour $n = 10$ accompagnée de la prédiction pour tout u_0 (—) obtenue par (3.19) ainsi que des deux limites (.....) et (---) correspondant respectivement aux lois (3.16) et (3.17)

approchée par $u/U \simeq (z/Z)^2/2$ associée à la conservation du débit le long du jet et au critère de rupture (3.15) conduit à une longueur de jet qui s'écrit comme

$$\frac{L}{Z} = \sqrt{\frac{2u_0}{U}} \frac{h_0}{nd}. \quad (3.16)$$

Dans la limite où la fragmentation intervient dans le régime chute libre ($L \ll Z$), la loi (3.14) approchée par $u/U \simeq \sqrt{2z/Z}$ associée au même critère prédit

$$\frac{L}{Z} = \frac{1}{2} \left(\frac{2u_0}{U} \right)^2 \left(\frac{h_0}{nd} \right)^4. \quad (3.17)$$

Ces deux lois prédisent la longueur du jet dans les deux régimes extrémaux. En utilisant la résolution numérique de l'équation 3.12, il est possible d'étendre la prédiction à toute vitesse u_0 et toute taille de billes. La conservation du débit exprimée en $h = nd$ étant donnée par

$$\frac{u}{U} = \frac{u_0}{U} \left(\frac{h_0}{nd} \right)^2, \quad (3.18)$$



FIGURE 3.20 – Deux photographies laissant apparaître les modulations de type Plateau-Rayleigh (Jet de billes de 40 μm (haut) et de 10 μm (bas) en suspension dans un liquide de viscosité 0.13 Pa \cdot s).

la distance à laquelle le jet rompt est directement obtenue par la différence

$$\frac{L}{Z} = \left[z \left(\frac{u_0}{U} \left(\frac{h_0}{nd} \right)^2 \right) - z \left(\frac{u_0}{U} \right) \right] / Z, \quad (3.19)$$

où $z(u/U)/Z$ indique ici la fonction inverse de $\tilde{u}(\tilde{z})$ défini par 3.12.

La figure 3.19 regroupe les données des longueurs mesurées expérimentalement (voir figure 3.15) adimensionnées par la longueur visco-gravitaire Z en fonction du paramètre $\sqrt{2u_0/U}h_0/nd$. Elles sont accompagnées des deux lois asymptotiques (3.16) et (3.17) ainsi que la résolution numérique valide pour tout u_0 tirée de (3.19). Pour $\sqrt{2u_0/U}h_0/nd < 1$ tous les points expérimentaux se superposent bien à la prédiction, à moins d'un facteur 2 près. Cet écart reste néanmoins faible en regard de la variation d'un facteur ~ 100 sur la longueur réelle (en m). Dans la limite des $\sqrt{2u_0/U}h_0/nd > 1$, seules les billes de 10 μm et 40 μm ne semblent pas suivre la prédiction du régime inertiel (indiquées par la zone grisée). En effet, les longueurs mesurées sont d'au moins un ordre de grandeur inférieures à ce que prédit la loi (3.17).

Cette déviation systématique pour les plus petites billes semble liée à l'apparition de modulations de la section du jet de type Plateau-Rayleigh, loin de la buse. Ces modulations de la section du jet sont visibles sur la la figure 3.20. Contrairement aux billes de diamètre plus important, les jets de suspensions de billes de 10 μm et 40 μm sont suffisamment longs et fins pour que l'instabilité se développe. Pour ces diamètres de billes, nous devons donc considérer les effets de tension de surface qui jusqu'ici étaient négligés. Pour ce faire, nous adaptions au cas des suspensions l'argument employé par Javadi et *al.* [44] pour prédire la longueur d'un jet de liquide visqueux (newtonien) accéléré par la gravité (voir §1.1.2). Il consiste à dire que, le temps de trajet jusqu'à l'extrémité du jet est égal au temps nécessaire pour développer une modulation du diamètre d'ordre $h(L) - nd$ avec un taux de croissance typique $\sigma/\eta_e h(L)$ correspondant au cas d'un grand nombre de Ohnesorge ($\eta_e/\sqrt{\rho\sigma h(L)} \gg 1$). Formellement, cet argument s'écrit :

$$\int_0^L u^{-1} dz = \frac{\alpha\eta_e(h - nd)}{\sigma}, \quad (3.20)$$

où α est un paramètre d'ordre 1 qui est déterminé expérimentalement (voir plus bas). En utilisant la conservation du débit, cette équation se réécrit

$$\int_0^L u^{-1} dz = \frac{\alpha\eta_e}{\sigma} \left(\frac{h_0\sqrt{u_0}}{\sqrt{u}} - nd \right). \quad (3.21)$$

Dans la limite de chute libre, dans laquelle se situent les points expérimentaux entourés sur la figure 3.19, c'est-à-dire pour $u \simeq \sqrt{2gz}$, l'intégration de l'équation (3.21) conduit à la forme implicite suivante

$$\frac{L}{L_0} = \left[1 - \tilde{d} \left(\frac{L}{L_0} \right)^{1/4} \right]^{4/3}, \quad (3.22)$$

où

$$L_0 = \frac{1}{2} \left(\frac{\alpha \eta_e \sqrt{U} u_0 h_0}{\sigma} \frac{h_0}{Z} \right)^{4/3} Z, \quad (3.23)$$

et

$$\tilde{d} = \left(\frac{2U^2 L_0}{u_0^2 Z} \right)^{1/3} \frac{nd}{h_0}. \quad (3.24)$$

La longueur L_0 désigne la longueur d'un jet d'une suspension de billes dont le diamètre est nul, autrement-dit, c'est la longueur d'un jet de liquide newtonien de même viscosité équivalente [44, 80, 82]. Le nombre sans dimension \tilde{d} désigne quant à lui l'intensité du raccourcissement du jet dû à la présence des particules. Dans la limite où $d \ll 1$, nous retrouvons bien $L = L_0$, c'est-à-dire le cas d'un liquide sans billes. Dans la limite $L/L_0 \ll 1$, tend asymptotiquement vers \tilde{d}^{-4} , qui est exactement l'équation (3.17), prédite (dans la limite $u_0 \gg U$) lorsque les effets capillaires sont écrantés par les effets discrets.

Une expression explicite de L peut être obtenue en remarquant que (3.22) est une équation du troisième degré en $(L/L_0)^{1/4}$:

$$\frac{L}{L_0} = \left[\frac{2^{1/3} \left(9 + \sqrt{81 + 12\tilde{d}^3} \right)^{2/3} - (2/3)^{1/3} \tilde{d}}{6^{2/3} \left(9 + \sqrt{81 + 12\tilde{d}^3} \right)^{1/3}} \right]^4 \quad (3.25)$$

Nous sommes alors capables de représenter les points expérimentaux des jets de petites billes dans les coordonnées $(\tilde{d}, L/L_0)$ et de les comparer à la prédiction tenant compte des modulations capillaires du jet dont le seul paramètre α est inconnu. Ce dernier n'est pas ajusté mais déterminé expérimentalement à partir de la mesure de la longueur d'un jet de liquide visqueux newtonien. La mesure de L ($\equiv L_0$) pour un jet de PEG pur, donne $\alpha = 30$. Les points obtenus pour le PEG et les suspensions de petites billes sont représentés dans la figure 3.21. La tendance des données expérimentales est bien retrouvée à un facteur 2 près par cette approche prenant en compte les effets capillaires. Ceci est à comparer à l'écart de plus d'un ordre de grandeur entre les points expérimentaux (grisés sur la figure 3.19) et la prédiction (3.17).

La longueur d'un jet de suspension est donc bien décrite en prenant en compte sa nature de fluide effectif et le caractère discret des billes. L'amincissement, d'abord limité par la viscosité effective de la suspension puis par l'inertie, est brutalement accentué dès lors que la section du jet atteint l'échelle h^* à laquelle les effets de taille finie entrent en jeu.

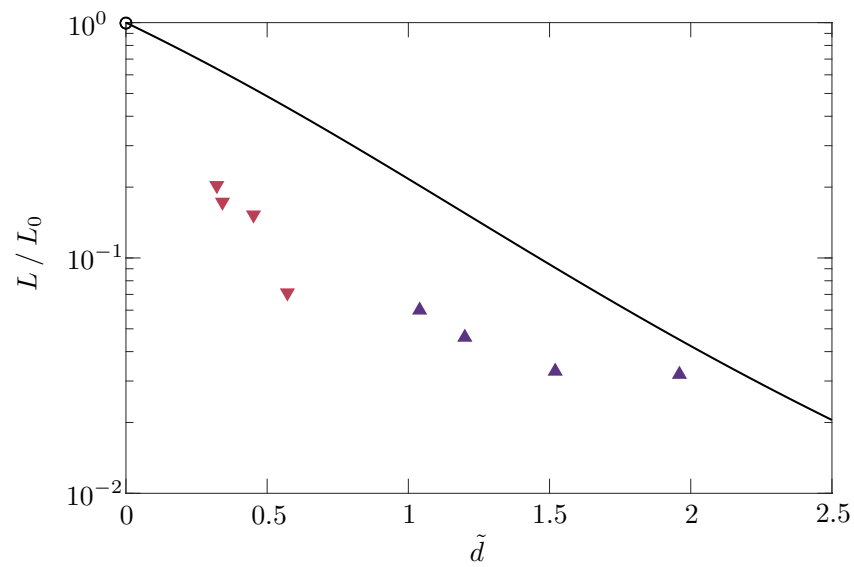


FIGURE 3.21 – Équation (3.25) (—) et points expérimentaux pour les longueurs de jets de suspensions de billes de $10\ \mu\text{m}$ (\blacktriangledown) et de billes de $40\ \mu\text{m}$ (\blacktriangle) ainsi que pour le PEG pur (\circ). Les points expérimentaux sont ceux situés dans la zone grisée de la figure 3.19.

3.4 Article soumis

Breakup of a particulate suspension jet

J. Château¹ and H. Lhuissier^{1,*}

¹*Aix Marseille Univ, CNRS, IUSTI, Marseille, France*

(Dated: May 18, 2018)

As viscosity is increased, a liquid capillary jet accelerated by gravity stretches over increasingly large distances before eventually breaking up. This Newtonian behavior is profoundly altered for particulate suspensions. Adding solid particles to a liquid, which increases the effective viscosity, can paradoxically shorten the jet considerably. This apparent contradiction is rationalized by considering finite size effects occurring at the scale of a few particles. A model is presented which captures the breakup length of suspension jets observed experimentally for a broad range of liquid viscosity, particle size and initial velocity of the jet. These results can be readily extended to any stretched jet configuration and potentially to other fluid media having a granularity.

The fragmentation, or atomization, of a liquid involves the formation of transient, stretched, liquid jets, which eventually break-up and resolve in drops [1, 2]. For an homogeneous viscous jet, the rate of pinching is inversely proportional to the liquid viscosity [3] and pinch-off proceeds continuously down to atomic scales [4, 5]. Highly viscous jets can therefore reach considerable lengths before breaking up, which explains the seemingly never-breaking threads one can form with honey [6], or the notorious difficulty of atomizing extension-thickening polymer solutions [7]. However, if the case of most homogeneous liquids is understood [8, 9], that of polyphasic media, such as particulate suspensions, has received much less attention although they are ubiquitous media demanding smaller and smaller processing scales (of e.g. encapsulation, printing or molding in food, cosmetic, paper, coating or building industries) for which specific atomization behaviors can be expected. Indeed, as breakup proceeds, their intrinsic granularity is necessarily probed at some point by the vanishing dimension of the jet, and finite size effects eventually matter. If recent observations on pending drops [10, 11] or liquid bridges [12] have reported different facets of adding macroscopic particles to a viscous liquid thread, such as (i) an increase in the thread effective viscosity delaying the breakup and (ii) finite size effects specific to particulate suspensions hastening the breakup, the balance between these antagonists effects at the scale of a whole jet is unknown. Therefore, understanding the most important scales of the fragmentation of a suspension jet, namely the breakup length and drop sizes, have remained an open question.

We tackle this fundamental question on the simplest, albeit generic, configuration of a stretched jet, i.e., that of a straight, gravity-driven jet with a constant flow rate. We consider non-Brownian, rigid, particules suspended in a Newtonian liquid at a large solid volume fraction (50%), at which a suspension can flow steadily (without jamming) and shows a pseudo-Newtonian bulk rheology involving contacts between particles. By varying the liquid viscosity, the flow rate and the particle size, this experimental system allows to vary the stretching and onset of finite size effects, which is crucial to explore the

different breakup regimes and decipher the mechanisms selecting the jet length.

The experiment consists in observing the breakup of a gravity-driven suspension jet. The jet is formed by extruding the suspension vertically from a large syringe through a small nozzle with inner diameter $h_0 = 2.90$ mm (a cylindrical stainless steel tube with length 10 mm and thickness 0.35 mm). A constant flow rate, with mean velocity at the nozzle, $2 \text{ mm/s} \lesssim u_0 \lesssim 1 \text{ m/s}$, is imposed with the help of a rigid piston and a precision linear motor (M414.2PD, PI). The suspension consists of spher-

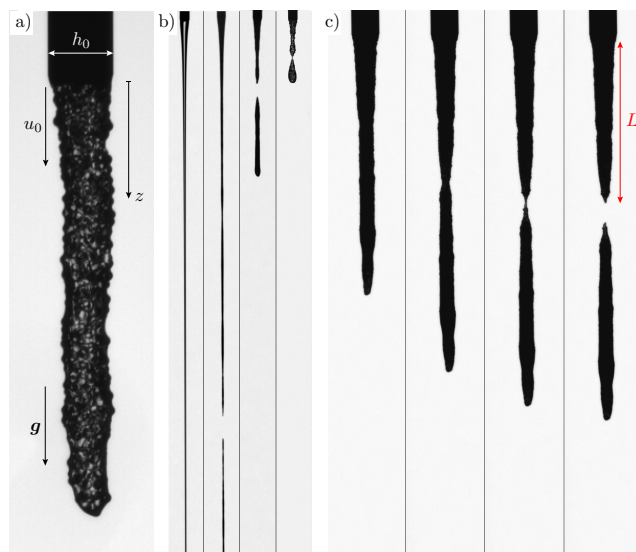


Figure 1. (a) Gravity-driven jet of a particulate suspension ($d = 550 \mu\text{m}$, $u_0 = 16.8 \text{ cm/s}$). (b) From left to right: Newtonian liquid jet and suspension jets with a particle volume fraction of 50% and increasing particle diameter ($d = 40, 135$ and $550 \mu\text{m}$) having the same effective shear viscosity ($\sim 4 \text{ Pa.s}$) and the same flow rates ($u_0 = 4.2 \text{ cm/s}$). The pure liquid jet is 5 times longer than shown. (c) Development of the localized pinching which hastens the breakup of a suspension jet ($d = 135 \mu\text{m}$, $u_0 = 4.2 \text{ cm/s}$, times relative to breakup are $-107, -19, -2$ and $+2.5 \text{ ms}$, respectively). The nozzle diameter is $h_0 = 2.90 \text{ mm}$ for (a-c). See movies in SI.

ical, polystyrene particles (Dynoseed TS, Microbeads), with density $\rho = 1050 \text{ kg/m}^3$, immersed in an iso-density, Newtonian liquid. All the suspensions are prepared at the same particle volume fraction $\phi = 50\%$, which is conserved within 1% during the extrusion (as verified by weighing both 30 mL of extruded suspension and its dry content). The particle diameter d is varied between 10 and 550 μm (for each suspension the relative standard deviation of diameter is below 8%). The liquid is either (i) pur PEG (3.9 kg/mol poly(ethylene glycol-ran-propylene glycol)-monobutyl-ether by Sigma-Aldrich, with surface tension $\sigma = 36 \text{ mN/m}$ and viscosity $\eta_0 = 2.4 \text{ Pa}\cdot\text{s}$), (ii) a 45%wt aqueous solution of PEG ($\sigma = 38.5 \text{ mN/m}$ and $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$), or (iii) a 30.5%wt aqueous solution of Ucon oil (polyalkylene glycol-composed lubricant Ucon 75-H 90 000 by Dow, $\sigma = 50.5 \text{ mN/m}$ and $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$). The jet is imaged in front of a bright background with the help of one or two side cameras (with a spatial resolution down to 60 μm). The jet thickness profile and the breakup location are obtained by thresholding the images. All experiments and rheological measurements are performed at the same temperature of $22 \pm 1^\circ\text{C}$.

The profound influence of the particles on the breakup of the jet is illustrated in Fig. 1b (see also movie in SI). Suspension jets with a particle size increasing from 40 to 550 μm are compared to a pure viscous liquid jet having the same flow rate ($u_0 = 4.2 \text{ cm/s}$) and the same typical effective viscosity ($\sim 4 \text{ Pa}\cdot\text{s}$). Clearly, the suspension jets are more corrugated and fragment much faster than the liquid jet, and, among suspensions, jets with large particles fragment faster than those with small particles. The importance of the phenomenon is better appreciated by noting that the pure liquid jet in Fig. 1b is actually 5 times longer than shown. To quantify this shortening, we measure the length of the jet, L , which we define as the distance between the nozzle and the most upstream breakup location, while varying systematically the flow rate, the suspending liquid viscosity and the particle size. The length L fluctuates from breakup to breakup (within typically 30% for a given set of parameters and without strong dependence to the parameters) as a consequence of the intrinsically disordered state of the suspensions. In the following, we focus on the mean value obtained by averaging over typically 10^2 breakup events.

The raw measurements of L are presented in the inset of Fig. 3. For a given particle size, the jet length is found to follow the same trends as for a viscous Newtonian liquid. L increases with increasing initial velocity, u_0 , and increasing viscosity of the suspending liquid, η_0 . However, for fixed u_0 and η_0 , the jet systematically and monotonically shortens as the particle size is increased. The shortening can be very significant, reaching a factor of typically 10^2 relative to the liquid case for the largest particles ($d = 550 \mu\text{m}$), and holds all over the large range of flow rates and suspending liquid viscosities we have considered. This has the counterintuitive consequence

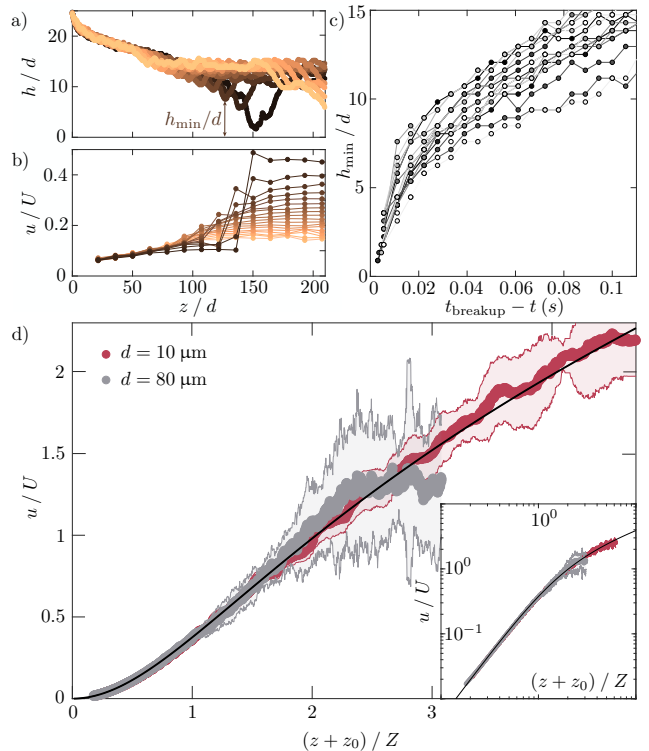


Figure 2. (a-b) Evolution of the jet thickness and velocity profiles from breakup to breakup for the sequence shown in Fig. 1c (the profiles are sampled every 5.6 ms, later profiles are darker). (c) Time-evolution of the local minimal diameter until pinch-off for 17 independent breakup events (same conditions as in (a-b)). (d) Steady velocity profile upstream of the breakup for two different particles sizes and a large nozzle ($h_0 = 11.6 \text{ mm}$). The solid line is the Newtonian profile solution of Eq. (1). z_0 embeds the initial velocity u_0 . The envelop indicates the standard deviation. Inset: same data in logarithmic scales.

(observed e.g. for $d \geq 135 \mu\text{m}$ and $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) that a viscous jet can be shortened by adding particles at a large volume fraction, in spite of the increase in the effective viscosity caused by the particles, which should delay the breakup and lengthen the jet.

The reason for this apparent paradox lies in the dynamics of jet fragmentation. Fig. 1c presents a typical suspension jet over the few instants preceding its breakup (see also movie in SI). It shows that, as reported for pending drops and capillary bridges [10–13], the breakup results from a localized necking of the jet, which seems to fail catastrophically. This is confirmed by following, in Fig. 2a-b, the evolution of the thickness and velocity profiles along the jet back to the previous pinch-off event (the velocity is measured from the displacement of the jet surface corrugations by a correlation method (PIV) with a typical relative precision of 10^{-2}). Over the period between two successive breakups, the deformation of the jet changes qualitatively with time. Initially, the jet

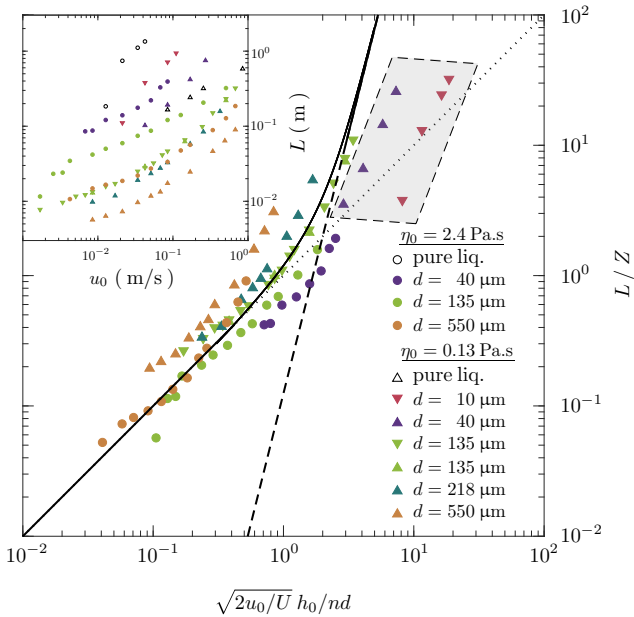


Figure 3. Inset: Breakup length versus extrusion velocity for suspensions (\bullet PEG, \blacktriangle 45%wt PEG, \blacktriangledown 30.5%wt Ucon oil) and viscosity-matched pure liquids (\circ PEG, \triangle 30.5%wt Ucon oil). Main: Dimensionless data for the suspensions. The dashed and dotted lines are the predictions (Eq. (3) and (4), respectively) for the viscous and inertial stretching regimes, with $n = 10$. The solid line is the numerical solution of Eq. (1) and (2) connecting both asymptotes. The light grey domain encloses the cases developing a capillary modulation (see text) and plotted in Fig. 4.

diameter, h , and stretching rate, $\partial_z u$, are uniform over long distances. Later, however, the jet develops a neck where the pinching localises and accelerates, as attested by increasingly large and localized stretching rates. In agreement with previous experiments with systematically varied particle sizes and volume fractions [13], this catastrophic acceleration of the pinching is found to occur for $h = nd \approx 10d$, i.e., when the jet diameter has thinned down to a few particles sizes. The d scaling is a signature of the finite size effects involved in the pinching acceleration, whereas the pre-factor n is a non-trivial function of ϕ which has also been measured on capillary bridges to be close to 10 for $\phi = 50\%$ [13].

The observations above are crucial for understanding the breakup length. They suggest that at least two facets of the deformation of a suspension jet need to be considered to rationalize its shortness: (i) the stretching base state of a smooth unmodulated jet and (ii) deviations from this base state leading to a finite time pinch-off. Clearly, both facets are strongly impacted by the presence of the particles, since the latter increase the effective viscosity of the jet and provoke a sudden necking hastening the breakup. Nevertheless, they also share similarities with the case of a Newtonian jet, as suggested by the

converging behaviors for a decreasing particle size. We thus consider, as a starting point, the steady base state of a Newtonian jet (neglecting, for now, the Plateau-Rayleigh capillary destabilization). For sufficiently long jets ($L \gg h_0$), this base state is well captured by a unidimensional, slender-slope approximation of the momentum and mass equations:

$$uu_z = g + \frac{3\eta}{\rho} \frac{(h^2 u_z)_z}{h^2}, \quad h^2 = \frac{h_0^2 u_0}{u}, \quad (1)$$

which naturally introduces the visco-gravity length and velocity scales $Z = (9\eta_e^2/\rho^2 g)^{1/3}$ and $U = (3\eta_e g/\rho)^{1/3}$, respectively [14]. At short distance from the nozzle ($u \ll U$) the stretching is limited by viscosity, and $u/U \simeq (z/Z)^2/2$. Conversely, at long distance ($u \gg U$) the jet is free-falling, and $u/U \simeq \sqrt{2z/Z}$.

Using these laws for a suspension jet requires that a Newtonian extensional effective viscosity can be defined and measured. We validate this point (already adopted in previous works [10–12]) by performing velocity measurements with a larger nozzle ($h_0 = 11.6$ mm) in cases when the rheological signature on the stretching base state and deviations from this base state are decoupled, i.e., when the breakup occurs at a distance much larger than Z (the velocity is measured from the jet thickness profile assuming a steady flow and PIV measurements yield the same value within 5%, which confirms the steadiness). As seen from Fig. 2d, the experimental velocity profiles obtained for two different particle sizes follow closely the Newtonian profile (1) upstream from the breakup. This collapse validates the Newtonian effective viscosity approach and also yields a measurement of the effective extensional viscosity, $\rho\sqrt{gZ^3}/3$, from the fitting length Z . In agreement with recent experiments and simulations [13, 15, 16], the extensional measurements ($\eta \simeq 7.0$ and 6.7 ± 0.3 Pa.s for $d = 80$ and $10 \mu\text{m}$, respectively) closely agree with the shear effective viscosity ($\eta \simeq 6.8$ and 5.5 ± 1.0 Pa.s, respectively), which is measured, independently, in a dedicated shear cell.

On the ground of the validity of the Newtonian base state for a ‘thick’ jet and of the heuristic onset for the finite-size catastrophic breakup we can now propose a model for the jet length. Assuming that the Newtonian approach is valid until finite-size effects come into play and that the subsequent pinch-off duration is negligible, one obtains

$$h(z = L) = nd, \quad (2)$$

with $h(z)$ defined by Eq. (1). For short jets this condition yields

$$\frac{L}{Z} = \sqrt{\frac{2u_0}{U}} \frac{h_0}{nd}, \quad (3)$$

whereas for long jets it gives

$$\frac{L}{Z} = \frac{1}{2} \left(\frac{u_0}{U}\right)^2 \left(\frac{h_0}{nd}\right)^4. \quad (4)$$

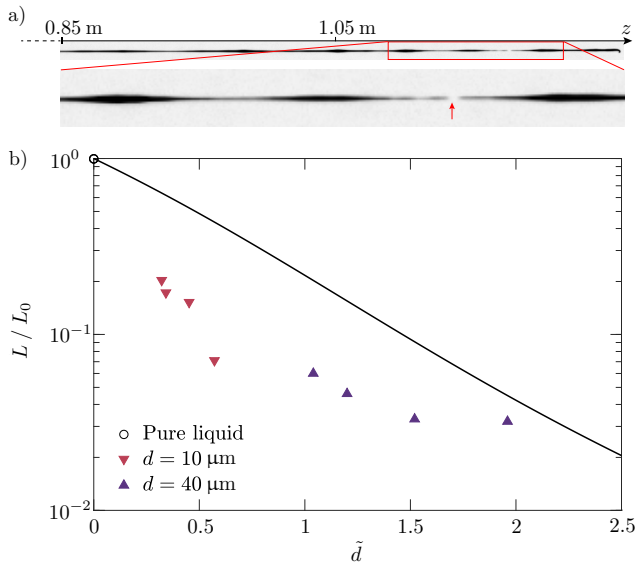


Figure 4. (a) Snapshot and close-up view of a jet with small particles ($d = 10 \mu\text{m}$) developing a Plateau-Rayleigh modulation prior to breaking-up. The arrow points at the breakup. (b) Breakup length in the presence of a capillary modulation of the jet versus $\tilde{d} = (2U^2 L_0 / u_0^2)^{1/4} nd / h_0$ (the data are those inside the light grey domain in Fig. 3). The solid line is Eq. (6) with $n = 10$. The value of α ($=30$) is calibrated on the pure liquid case ($\eta_0 = 2.4 \text{ Pa}\cdot\text{s}$).

These predictions for the viscous and the free-fall stretching regimes are expected to apply for $\sqrt{2u_0 h_0} / \sqrt{U} nd \ll 1$ and $\sqrt{2u_0 h_0} / \sqrt{U} nd \gg 1$, respectively. Consistently with the neglect of the Plateau-Rayleigh instability and of the terminal capillary pinch-off they do not involve the jet surface tension. They are compared in Fig. 3 to the experimental data, without adjustable parameter. In spite of their simplifications they capture both the magnitude and the dependence of L on $\sqrt{2u_0 h_0} / \sqrt{U} nd$ for all of the measurements (spanning ranges of η_0 , d and u_0 of respectively 18, 55 and 500), except for the smallest particles ($d = 10$ and $40 \mu\text{m}$) and the longer jets ($L/Z \gg 1$), whose symbols are enclosed in the light grey domain. The latter data precisely concern the case when the Plateau-Rayleigh capillary modulation of the jet cannot be neglected any more. This is confirmed by a direct observation of the jet. Indeed, as illustrated in Fig 4a for $d = 10 \mu\text{m}$, and by contrast with the case of larger particles (see Fig. 1c), the jet develops spatial periodic modulations of its diameter, akin to a capillary instability, prior to breaking up precisely at one neck of these modulations.

To rationalize the experimental breakup length for these ‘small’ particles, we are brought to consider that the condition for the catastrophic breakup of the jet does not apply to the unmodulated base state (1), but rather to the typical diameter at the neck of a capillary modulation developing on this base state. In this framework,

the breakup length is prescribed by the condition

$$\int_0^L u^{-1} dz = \alpha \eta_e (h - nd) / \sigma \quad (5)$$

expressing that the travel time down to L typically equals the time to develop a diameter modulation of order $h(L) - nd$ at the typical viscosity-limited growth rate of the Plateau-Rayleigh instability, $\sigma / \eta_e h(L)$, which is relevant here since $\eta_e / \sqrt{\rho \sigma h(L)} \gg 1$. α is a pre-factor of order ten embedding both the instantaneous growth rate pre-factors and those due to the history of the modulation amplitude gain along the jet in the presence of stretching. It will be calibrated with a pure liquid. For small particles the breakup is found to occur in the free-fall part of the jet ($L \gg Z$). We therefore make use of Eq. (5) together with the free-fall limit of Eq. (1) and obtain the following implicit equation for the length L :

$$L/L_0 = \left[1 - \tilde{d} (L/L_0)^{1/4} \right]^{4/3}, \quad (6)$$

where

$$L_0 = \frac{1}{2} \left(\frac{\alpha \eta_e \sqrt{U} u_0 h_0}{\sigma} \right)^{4/3} Z, \quad (7)$$

is the length for a vanishing particle diameter, i.e. that expected for a pure liquid having the same effective viscosity, and

$$\tilde{d} = \left(\frac{2U^2 L_0}{u_0^2 Z} \right)^{1/4} \frac{nd}{h_0}, \quad (8)$$

is the dimensionless particle size controlling the shortening of the jet relative to L_0 . Note that we recover for L_0 the expression derived by [6] for a Newtonian liquid when the base state stretching of the jet is independent of surface tension. Eq. (6) is compared, without adjustable parameter, to those measurements of long jets with small particles that develop capillary modulations in Fig. 4 (the pre-factor $\alpha = 30$ is calibrated independently from experiments with a pure liquid of similar viscosity ($\eta_0 = 2.4 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) by requiring $L_0 \equiv L$). It is found to capture both the magnitude and the trend of the breakup length with the dimensionless particle diameter \tilde{d} . Note that for ‘large’ particles Eq. (6) asymptotically tends towards $L/L_0 = \tilde{d}^{-4}$, which is exactly Eq. (4). Therefore, $\tilde{d} \sim 1$ represents the boundary between the regime when the jet length is determined by the sole particle size and the regime when both finite size effects and capillarity matter.

To conclude, the fragmentation of a thick suspension jet eventually probes the suspension granularity and thus naturally involves both the bulk rheology, which controls the initial stretching and destabilization, and finite size effects provoking a localized acceleration of the pinching akin to a catastrophic failure. For a concentrated suspension these two stages are essentially decoupled, which

permits to understand the breakup length of a stretched jet in the different regimes where viscosity, inertia or capillary destabilization are involved. This also rationalizes why adding particles to a jet at a large volume fraction can shorten the jet in spite of increasing the jet viscosity. These results are readily extendable to any stretched jet configuration and should therefore apply to most atomization processes. They also demand further efforts to understand the size of the drops, or fragments, as well as to be extended to other polyphasic media, such as foams, emulsions or fiber suspensions.

* henri.lhuissier@univ-amu.fr

- [1] F. Savart, Ann. Chim. France **53**, 337 (1833).
- [2] J. Plateau, *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires* (Ghauthier-Villard, Paris, 1873).
- [3] J. Lord Rayleigh, Phil. Mag. **34**, 145 (1892).
- [4] J. Eggers, Phys. Rev. Lett. **71**, 3458 (1993).
- [5] D. T. Papageorgiou, Phys. Fluids **7**, 1529 (1995).
- [6] A. Javadi, J. Eggers, and D. Bonn, Phys. Rev. Lett. **110**, 144501 (2013).
- [7] G. H. McKinley, in *Rheology Reviews*, edited by K. Walters (Aberystwyth, 2005), pp. 1–48.
- [8] P. Doshi, R. Suryo, O. E. Yildirim, G. H. McKinley, and O. A. Basaran, J. Non-Newton. Fluid Mech. **113**, 1 (2003).
- [9] J. Eggers and E. Villermaux, Rep. Prog. Phys. **71**, 036601 (2008).
- [10] R. J. Furbank and J. Morris, Int. J. Multiph. Flow **33**, 448 (2007).
- [11] C. Bonnoit, T. Bertrand, E. Clément, and A. Lindner, Phys. Fluids **24**, 043304 (2012).
- [12] W. Mathues, C. McIlroy, O. G. Harlen, and C. Clasen, Phys. Fluids **27**, 093301 (2015).
- [13] J. Château, É. Guazzelli, and H. Lhuissier, Submitted to J. Fluid Mech. (2018).
- [14] D. R. Brown, J. Fluid Mech. **10**, 297 (1961).
- [15] R. Seto, G. G. Giusteri, and A. Martiniello, J. Fluid Mech. **825**, R3 (2017).
- [16] O. Cheal and C. Ness, arXiv pp. 1–20 (2018).

3.5 Volume des gouttes et refragmentation

Comprendre la fragmentation d'un jet ne se résume pas à comprendre la longueur du jet avant fragmentation. Il est nécessaire de comprendre aussi la taille des fragments formés par la brisure du jet. En effet, cette taille peut être décorrélée de la longueur du jet (un jet long peut éventuellement se fragmenter en très petites gouttes). Elle est souvent la donnée la plus recherchée en tant que principale caractéristique du produit d'un processus de fragmentation. Nous nous intéressons ici au volume des gouttes qui prennent leur diamètre après relaxation vers une forme sphérique. La longueur des gouttes, qui précise leur forme avant relaxation sera discuté à la section 3.6.

La figure 3.22 illustre le devenir possible d'une goutte suite à son détachement : soit elle ne se refragmente pas et sa forme relaxe vers une sphère, auquel cas nous la dénomons goutte primaire, soit elle se refragmente en un certain nombre de gouttes de plus petite taille (en trois gouttes sur la figure 3.22b), auquel cas nous dénomons les fragments gouttes secondaires.

Pour vérifier que les gouttes ne se refragmentent pas en dehors du champs, nous avons suivi la relaxation de la forme des gouttes dans leur chute. Cette vérification est faite en lâchant la caméra plusieurs fois au cours d'une vidange de seringue. Nous parvenons ainsi à capturer plusieurs évènements de chute de goutte dont un évènement est illustré sur la figure 3.23.

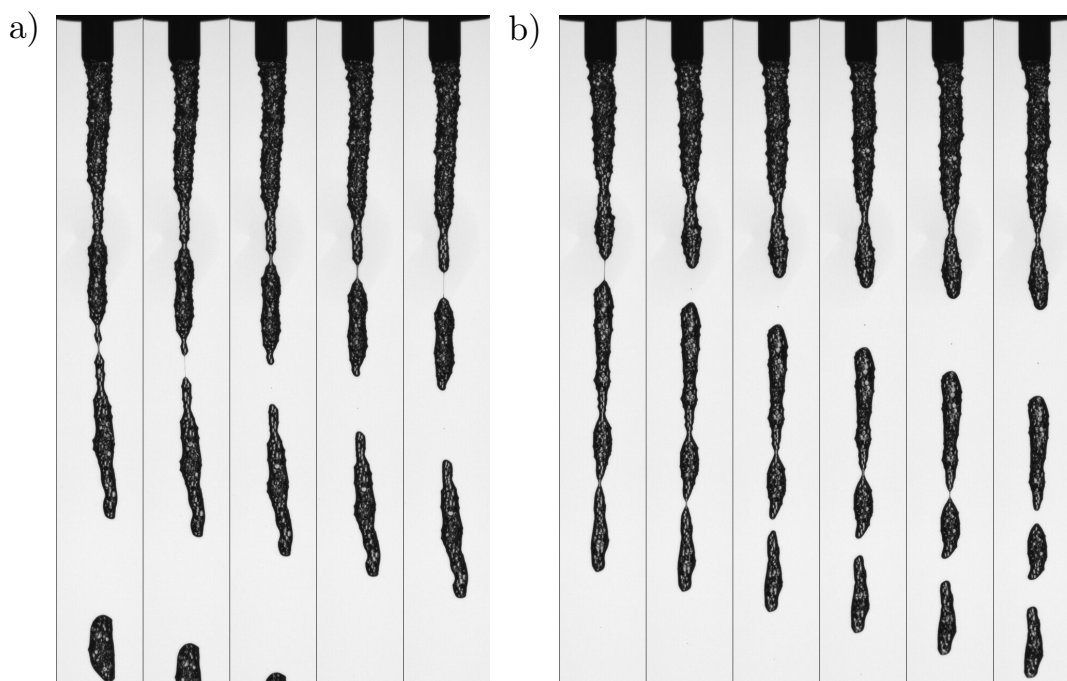


FIGURE 3.22 – Les deux types de gouttes formées par la fragmentation d'un jet de suspension ($d = 550 \mu\text{m}$, $\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $u_0 = 0.17 \text{ m/s}$). a) Création de deux gouttes primaires successives qui ne se refragmentent pas en cours de chute. b) Création d'une goutte primaire qui se refragmente à deux reprises en cours de chute pour former trois gouttes, appelées gouttes secondaires.



FIGURE 3.23 – Relaxation de la forme d’une goutte primaire au cours de sa chute. La dérive vers le haut de l’image est dû au fait que la caméra, lâchée au cours de cette expérience, ne chute pas exactement à la même vitesse que la goutte. Sur la dernière image, la goutte se situe à environ 130 cm de la buse.

La mesure du volume de chaque goutte nécessite qu’elles ne soient pas trop déformées pour rester proche de l’hypothèse d’axisymétrie (voir la méthode détaillée dans la section 3.1). Dans le cas inverse, par exemple si les gouttes sont entortillées, nous ne pouvons accéder qu’au volume moyen à partir du comptage des gouttes créées sur un intervalle de temps long et du débit du jet.

La figure 3.24 présente le volume moyen des gouttes mesurées selon ces deux méthodes en fonction de la vitesse débitante. Nous pouvons tout d’abord noter que les mesures effectuées sont très comparables sur toute la gamme de vitesses débitantes explorées (l’écart typique constaté est d’environ 10%), ce qui permettra d’indiquer par la suite la méthode la plus adaptée à chaque fois. Par ailleurs, cette figure nous permet de discuter les premières tendances observées pour les volumes des gouttes créées. Ω augmente d’un facteur $\simeq 2$ entre les deux vitesses extrémales pour cette suspension de billes de $135\ \mu\text{m}$ pour laquelle $\eta_0 = 0.13\ \text{Pa}\cdot\text{s}$. Si l’évolution du volume des gouttes ne paraît pas négligeable, il est utile de ramener le volume des gouttes au diamètre d’une goutte sphérique de volume équivalent. Alors, l’augmentation d’un facteur $\simeq 2$ constaté sur le volume correspond à une augmentation de seulement 1.26 sur le diamètre.

La figure 3.25 présente l’évolution du volume moyen (obtenu par détermination du volume de chaque goutte) en fonction du diamètre de particules, excepté pour $d = 10\ \mu\text{m}$ où il est obtenu par comptage. Les volumes sont présentés pour les deux liquides suspendant de viscosité $0.13\ \text{Pa}\cdot\text{s}$ et $2.4\ \text{Pa}\cdot\text{s}$.

Pour le liquide le moins visqueux, mises à part les gouttes créées pour des vitesses d’extrusion proche de $1\ \text{m/s}$, il n’y a pas de variation nette de Ω , qui fluctue autour de $100\ \text{mm}^3$. L’augmentation de la viscosité n’a pas non plus d’effet drastique sur le volume

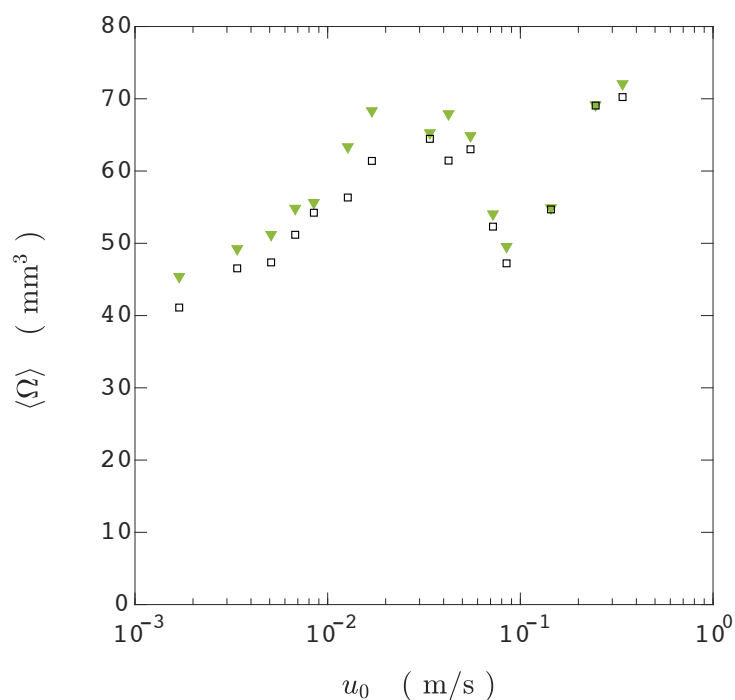


FIGURE 3.24 – Volume moyen des gouttes en fonction de la vitesse débitante. Les points (\blacktriangledown) sont obtenus à partir de la détermination du volume individuel des gouttes, tandis que les points (\square) sont obtenus par comptage des gouttes. Tous les points correspondent à une suspension de billes de $135\ \mu\text{m}$ en suspension dans un liquide de viscosité $0.13\ \text{Pa} \cdot \text{s}$.

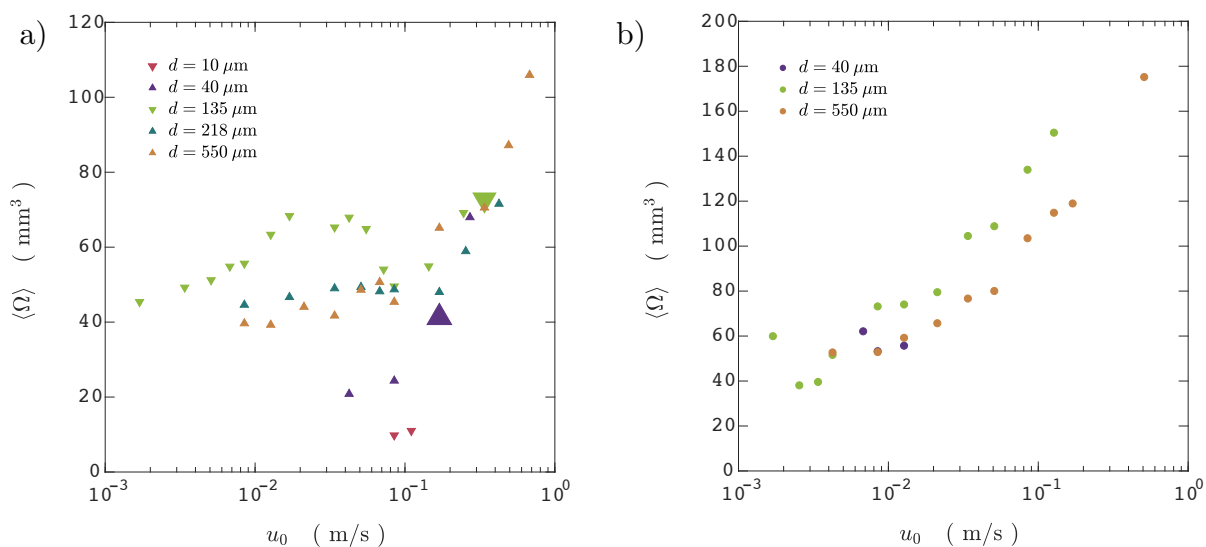


FIGURE 3.25 – Volume des gouttes finales pour différents diamètres de billes suspendues dans un liquide de viscosité $0.13\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ (a) et $2.4\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ (b). Pour les deux points grossis, la distribution des volumes est représentée sur la figure 3.26b-c.

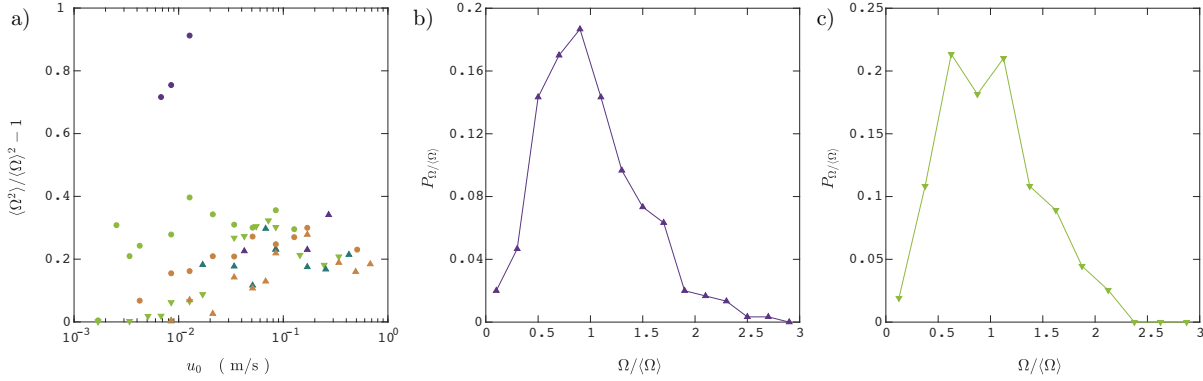


FIGURE 3.26 – a) Variance relative des volumes des gouttes finales. b-c) Distribution des volumes des gouttes finales pour des suspensions de billes de $40 \mu\text{m}$ (b) et de billes de $135 \mu\text{m}$ (c) suspendues dans un liquide de viscosité $0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$

moyen mesuré, qui reste de l'ordre de 100 mm^3 . Cependant, nous noterons que l'évolution du volume moyen est relativement monotone avec la vitesse d'extrusion pour le liquide suspendant de viscosité $2.4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ et varie d'un facteur 3 entre les valeurs de vitesses extrémales.

La figure 3.26a présente la variabilité des volumes de goutte au sein de chaque jet, quantifié par la variance relative $\langle \Omega^2 \rangle / \langle \Omega \rangle^2 - 1$. La variance relative du volume des gouttes créées reste, sur la gamme de vitesses débitantes explorées, relativement constante et centrée autour de 0.2 (voir figure 3.26a). Seule la suspension de billes de $40 \mu\text{m}$ donne lieu à des gouttes de volumes très divers.

Les figures 3.26b-c précisent la variabilité des tailles au travers de deux distributions de volumes obtenus pour des séquences contenant au moins 300 gouttes. Les distributions obtenues sont relativement larges et indiquent donc que pour le nombre de gouttes comptées, les volumes formés sont disparates. On notera toutefois que les très grosses gouttes finales sont assez rares, certainement parce que celles-ci se refragmentent en plusieurs gouttes pendant leur chute.

L'information concernant la refragmentation des gouttes en cours de chute est présentée sur la figure 3.27. Elle reporte pour une suspension de billes de $135 \mu\text{m}$ ($\eta_0 = 0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$), la proportion de gouttes qui ne se refragmentent jamais suite à leur détachement du jet, et ce en fonction de la vitesse initiale à la buse. Outre le fait que dans l'ensemble, la part de gouttes qui se refragmentent est assez faible ($\lesssim 30\%$), elle est complètement marginale ($\lesssim 3\%$) pour les basses vitesses, qui s'apparentent à un régime de goutte-à-goutte.

Pour résumer, à basse vitesse, en régime de goutte-à-goutte, nous observons peu de refragmentations de gouttes. Dans le régime inertiel, des gouttes de plus gros volume sont formées lorsqu'elles se détachent du jet et se refragmentent en cours de chute pour certaines d'entre-elles.

3.6 Forme des gouttes et mode du pincement

Le volume des gouttes constitue la caractéristique principale des fragments formés. Cependant, ces volumes ne sont que la conséquence de la fragmentation d'une portion de jet essentiellement cylindrique en deux lieux distincts. Pour comprendre les volumes il est donc essentiel de s'intéresser aux longueurs des gouttes au moment où elles sont créés.

La figure 3.28 présente les rapports d'aspect pour une suspension de billes de $135\ \mu\text{m}$ ($0.13\ \text{Pa}\cdot\text{s}$). Ce rapport d'aspect est défini comme le rapport de la longueur de la goutte Λ à la brisure et du diamètre moyen $h_G = \sqrt{\langle h^2 \rangle}_{\text{Goutte}}$ de la goutte, qui dans l'approximation où les gouttes conservent le diamètre du jet au moment de la brisure, correspond aussi au diamètre moyen du jet à l'altitude de la brisure $h|_L$. Nous obtenons expérimentalement que ce rapport d'aspect croît sur toute la gamme de vitesses explorées (environ 3 décades).

Il est possible de prédire l'évolution du rapport d'aspect $\Lambda/h|_L$ des gouttes pour le cas d'un liquide newtonien. Pour cela, nous pouvons nous appuyer sur les travaux de Javadi et al. [44] (retrouvés comme limite lorsque d tend vers 0 dans la partie 3.3) qui prédisent la longueur à laquelle un jet de liquide newtonien se brise. Cette longueur est obtenue en considérant que le temps de chute d'une portion de jet à la vitesse de chute libre jusqu'à L_0 est équivalent au temps pour faire croître une instabilité de type Plateau-Rayleigh. L'expression obtenue pour la longueur d'un jet newtonien est, à une constante près

$$L_0 \sim \left(\frac{gu_0^2 h_0^4 \eta^4}{\sigma^4} \right)^{1/3} \propto u_0^{2/3}. \quad (3.26)$$

Dans la limite où le jet est en chute libre au moment de sa brisure, sa vitesse $u = \sqrt{2gL_0}$, ce qui prédit que le diamètre adimensionné à la brisure évolue selon

$$\frac{h|_{L_0}}{h_0} \sim u_0^{1/2} \left(\frac{g^{5/2} u_0^2 h_0^4 \eta^4}{\sigma^4} \right)^{-1/12} \propto u_0^{1/3}. \quad (3.27)$$

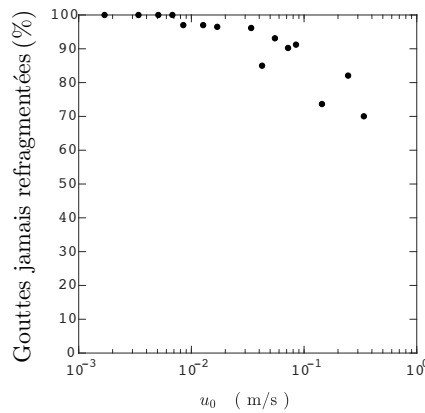


FIGURE 3.27 – Taux de gouttes qui ne se refragmentent pas en cours de chute.

Pour aboutir à une prédiction pour l'évolution du rapport d'aspect des gouttes créées $\Lambda/h|_L$, ne nous manque plus que la détermination des longueurs d'onde qui sont sélectionnées. La sélection de ces longueurs d'onde dépend de la relation de dispersion locale et de l'historique d'amplification pour un mode ayant été advecté avec la matière depuis la buse jusqu'à la brisure. Ceci peut être formalisé, de manière similaire à Senchenko et Bohr [82] et Le Dizès et Villermaux [52]. Nous donnons ici uniquement le raisonnement expliquant le comportement asymptotique en chute libre.

Pour cela, il faut repartir de la relation de dispersion de l'instabilité capillaire pour un jet uniforme infini de diamètre h quelconque donnée au chapitre 1. Une réécriture en fonction du nombre de Ohnesorge nous permet de relier le taux de croissance ω au nombre d'onde k par

$$(-i\omega)\tau_\rho = \sqrt{\frac{1}{2^3}[(kh)^2 - \frac{1}{4}(kh)^4] + \frac{9}{2^6}Oh^2(kh)^4 - \frac{3}{8}Oh(kh)^2}, \quad (3.28)$$

pour une perturbation du diamètre de la forme $e^{i(kz-wt)}$. Cette relation de dispersion est représentée pour différents Oh sur la figure 3.29. Dans la limite visqueuse ($Oh \gg 1$), où le mode le plus instable $k_{\max}h$ est directement relié à Oh par la relation

$$k_{\max}h \sim \frac{1}{\sqrt{Oh}}. \quad (3.29)$$

et plus Oh est grand, moins le taux de croissance est sélectif. Pour un jet étiré, la sélection des longueurs d'onde au long du jet est essentiellement déterminée par les conditions en

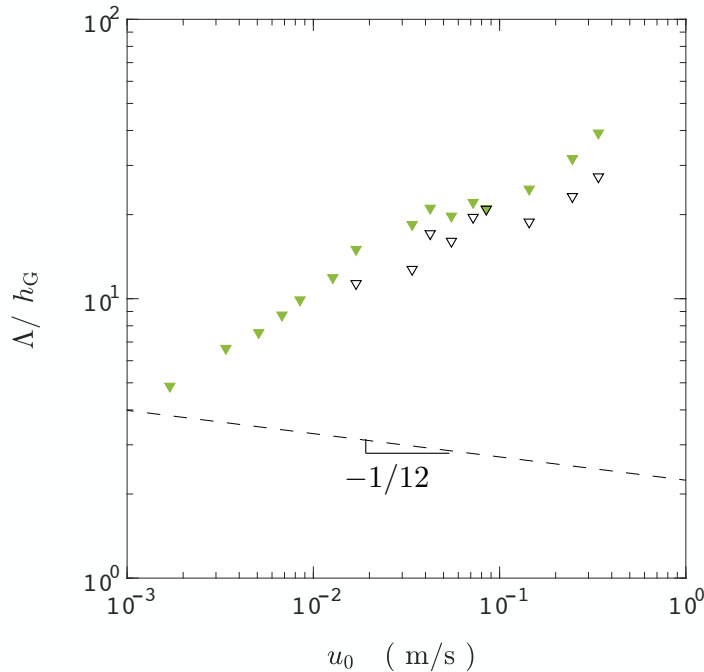


FIGURE 3.28 – Rapport d'aspect des gouttes primaires (\blacktriangledown) et secondaires (\triangledown) pour une suspension de billes de $135 \mu\text{m}$ ($0.13 \text{ Pa} \cdot \text{s}$). La ligne pointillée est un guide de pente $-1/12$.

bout de jet. En effet, la croissance de l'instabilité est plus rapide sur un jet mince et les modes les plus amplifiés sont ceux qui ont pu explorer une large partie du spectre de la relation de dispersion au cours de leur étirement et finissent donc proche de k_{\max}

Il est donc primordial de prendre en compte le Ohnesorge pour le diamètre local du jet en $z = L_0$. Le nombre de Ohnesorge $Oh = \eta / \sqrt{\rho\sigma h}|_{L_0}$ peut se réécrire

$$Oh = \left(\frac{u|_{L_0}}{u_0} \right)^{1/4} Oh_0, \quad (3.30)$$

avec $Oh_0 = \eta / \sqrt{\rho\sigma h_0}$, le Ohnesorge à la buse. Ainsi, le mode le plus instable évolue selon $k_{\max} h \propto (u/u_0)^{-1/8}$. Encore une fois, pour des brisures se déroulant alors que le jet est en chute libre, $u|_{L_0} \propto u_0^{1/3}$ associé à $k = 2\pi/\Lambda$, conduit à [52]

$$\frac{\Lambda}{h|_{L_0}} \sim \left[u_0^{-1} \left(\frac{g^{5/2} u_0^2 h_0^4 \eta^4}{\sigma^4} \right)^{1/6} \right]^{1/8} \propto u_0^{-1/12}. \quad (3.31)$$

Nous aboutissons donc à une prédiction pour le rapport d'aspect des gouttes créées (pour un liquide newtonien) qui dépend de la vitesse initiale à la puissance $-1/12$, dans la limite d'un jet en chute libre. La figure 3.31, qui permet une comparaison directe de cette dépendance à u_0 avec les mesures faites sur les images est en désaccord avec cette dépendance. Certes les points à basse vitesse ne correspondent pas à des gouttes se détachant alors que le jet est en chute libre, mais l'hypothèse de chute libre au moment de la brisure est de plus en plus vérifiée à mesure que u_0 augmente.

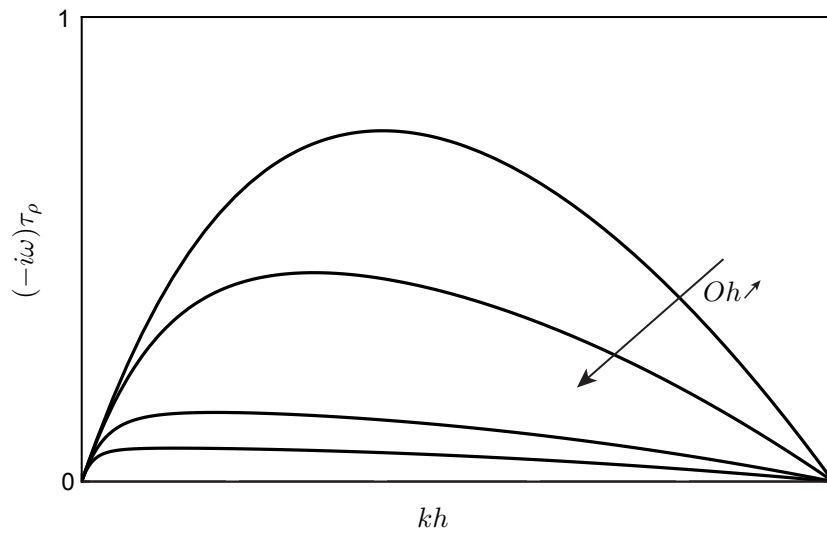


FIGURE 3.29 – Relation de dispersion de l'instabilité de Plateau-Rayleigh pour un jet non-étiré, de section uniforme, pour différentes valeurs du nombre de Ohnesorge, $Oh = \eta / \sqrt{\rho\sigma h} = 1, 2, 7, 15$.

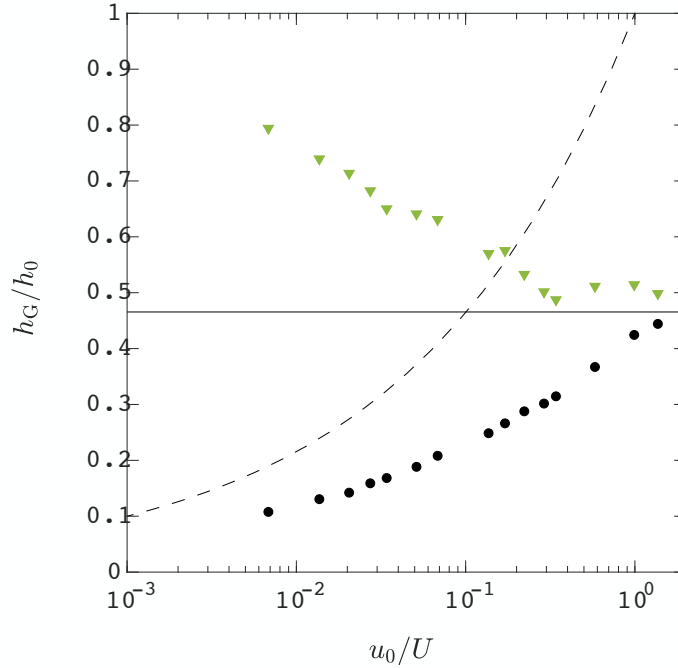


FIGURE 3.30 – Épaisseur du jet à la brisure telle que mesurée sur les gouttes au moment où elles se détachent (▼) et telle que prédite à partir du profil de vitesse et d'épaisseur théoriques aux distances L expérimentales (●). La ligne noire représente le critère $h^* = 10d$. La ligne pointillée représente la dépendance en $1/3$ tel qu'attendue pour un liquide newtonien.

De la même manière, la figure 3.30 présente le diamètre moyen mesuré sur les gouttes à la brisure $\langle h|_L \rangle / h_0 \equiv h_G / h_0$. Ce diamètre décroît de manière monotone sur la majeure partie des vitesses explorées et sature pour les grandes vitesses d'extrusion autour du critère $h^* = 10d$. À titre de comparaison, nous avons tracé pour ces mêmes expériences, l'épaisseur du jet déduite de la loi (3.12) à la longueur moyenne mesurée L , $\langle h|_L \rangle / h_0 \equiv h_G / h_0$. Les points tracés de cette façon ne suivent absolument pas les mesures expérimentales, à l'exception des points à grand u_0 . Ceci peut s'expliquer par le fait que l'épaisseur du jet prédite à la longueur L prend en compte un jet infini. Or, expérimentalement, les jets obtenus ne se brisent pas à partir d'un jet infini, ni à partir d'un jet très long et étiré sous la brisure.

Le rapport d'aspect, pour lequel nous venons de dériver la dépendance à u_0 est relié au volume Ω des gouttes par la relation

$$\frac{\Omega}{(h|_{L_0})^3} = \frac{\Lambda}{h|_{L_0}}. \quad (3.32)$$

En utilisant (3.27), nous pouvons déduire la dépendance du volume adimensionné à u_0

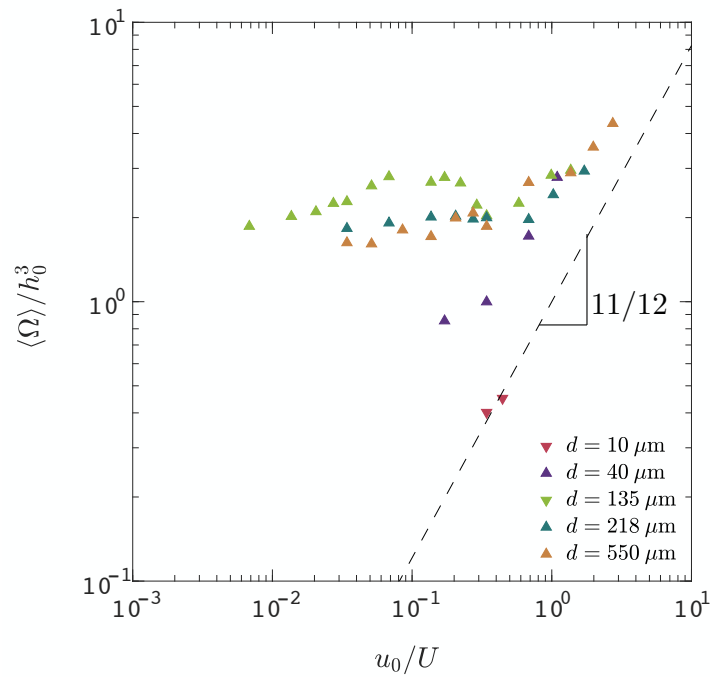


FIGURE 3.31 – Volume adimensionné en fonction de la vitesse débitante. La ligne pointillée est un guide de pente 11/12 tel que prédit par la loi (3.33).

dans le régime de chute libre :

$$\frac{\Omega}{h_0^3} \propto u_0^{11/12}. \quad (3.33)$$

La figure 3.31 représente les mesures expérimentales de ce volume adimensionné. Une majeure partie des données indique que ce volume reste relativement constant sur une grande gamme de vitesse ($u_0/U < 1$). Pour les points situés dans le régime de chute libre ($u_0/U > 1$), les données semblent suivre la dépendance à u_0 prédite par (3.33) pour un liquide newtonien.

Nous avons donc ici effectué une mesure extensive des volumes moyens des gouttes qui sont créées suite à la fragmentation d'un jet de suspension. Au-delà des volumes, nous avons caractérisé le rapport d'aspect de ces gouttes pour une gamme étendue de vitesses débitantes. Nous avons mis en évidence que les rapports d'aspect et volumes de gouttes peuvent fortement différer de ce qui est attendu pour un liquide newtonien sur la gamme de u_0 étudiée. Toutefois, les tailles de gouttes créées à grand u_0 semblent s'approcher de plus en plus des prédictions asymptotiques de tailles de gouttes de liquides visqueux newtoniens. Les travaux exploratoires des deux dernières sections demandent certainement une plus ample analyse, incorporant les effets discrets, afin d'expliquer les tailles de gouttes pour les suspensions.

CHAPITRE 4

PONT ET JET DE SUSPENSIONS FIBRÉES

Nous avons vu dans les chapitres précédents que la fragmentation d'un jet dépend fortement de la rhéologie du fluide et des effets de taille finie. Nous avons aussi vu qu'elle implique naturellement des étirements, que ce soit lors de l'amincissement réparti tout au long du jet ou pour les pincements localisés responsables du détachement des gouttes.

Les processus de fragmentations sont donc susceptibles d'être fortement impactés par la forme des particules suspendues. D'une part, parce que la forme pilote la micro-structure adoptée par la phase solide et affecte au premier ordre le comportement sous écoulement de la suspension. D'autre part, parce que les échelles auxquels les effets discrets deviennent dominants peuvent *a priori* être très différentes selon les rapports d'aspects des particules et leur orientation.

Dans ce chapitre, nous abordons ces questions pour des fibres cylindriques, génériques des particules allongées et ayant un unique paramètre de forme : le rapport l/d de leur longueur à leur diamètre. Pour une valeur fixe et grande devant 1 du rapport l/d ($= 11$), nous étudions systématiquement la dépendance à la fraction volumique. Nous adoptons la même démarche et utilisons les mêmes dispositifs que dans les chapitres précédents, pour les particules sphériques. Cette approche doit permettre de répondre aux mêmes questions concernant les échelles de temps et de longueur sélectionnées par fragmentation, mais aussi de mettre en avant les différences dues à la forme des particules, qu'elles parviennent ou non à s'aligner avec l'écoulement.

En suivant cette approche, nous serons amenés à faire des aller-retours entre les deux dispositifs expérimentaux. Les suspensions de fibres employées seront présentées à la section 4.1. Nous discuterons ensuite le temps de pincement d'un pont capillaire, et notamment sa variabilité d'un pincement à l'autre (4.2). Nous utiliserons le jet gravitaire pour obtenir une mesure de la rhéologie élongationnelle de nos suspension (4.3), que nous confronterons aux prédictions théoriques de Batchelor et aux données de la littérature (4.4), ainsi qu'à nos mesures du temps de pincement des ponts capillaires (4.5). Enfin, nous discuterons les résultats préliminaires que nous avons obtenus sur la fragmentation

d'un jet gravitaire (4.6).

4.1 Fibres et liquides utilisés

Les configurations expérimentales utilisées pour les suspensions de fibres sont les mêmes que celles employées pour les billes dans les chapitres précédents. Toutefois, l'utilisation de fibres implique quelques variations dans les protocoles, qui seront introduites au fur et à mesure dans les sections suivantes. Nous détaillons ici les fibres et les liquides utilisés.

Afin de nous concentrer sur les effets liés à la forme et à l'orientation des fibres, nous avons cherché des fibres cylindriques, monodisperses, petites devant le diamètre du jet et dont la densité permette de trouver un liquide visqueux et newtonien de même densité. Nous avons opté pour des fibres du commerce utilisées pour le flocage. Un fournisseur (Pin-floc) a pu nous fournir gracieusement des fibres de polyamide de diamètre $d = 28 \pm 1 \mu\text{m}$ et de longueur $l = 310 \pm 20 \mu\text{m}$ (mesurées au microscope pour une trentaine de fibres). Le rapport d'aspect de ces fibres, défini par l/d , est donc de 11 ± 1 . Quelques-unes de ces fibres sont présentées sur la figure 4.1. Elles sont très régulières et légèrement écrasées à leurs extrémités du fait du procédé de découpe. À leur réception, les fibres se présentent sous forme d'une multitude de petits fagots de taille millimétrique. Afin de défaire les fagots mais aussi pour débarrasser les échantillons des plus grosses impuretés, celles-ci sont immergées dans l'eau distillée puis fortement agitées à l'aide d'un barreau magnétique et en présence de quelques dizaines de billes de verre de 4 mm (pour défaire les fagots plus efficacement) pendant plusieurs minutes. Elles sont ensuite séchées dans une étuve pendant plusieurs heures.

Trois liquides newtoniens différents sont utilisés comme liquide suspendants. Leur viscosité mesurée à 23°C est de $0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (composé de 45% de PEG, 46.2% d'eau et 8.8% de ZnCl_2), $0.62 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (composé de 40% de Ucon, 52.2% d'eau et 7.8% de ZnCl_2) et $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (composé de 55% de Ucon, 37.8% d'eau et 7.2% de ZnCl_2). La quantité de ZnCl_2 est ajustée afin que ces liquides aient la même densité $\rho = 1140 \text{ kg/m}^3$ que les fibres. Les tensions de surface, σ , n'ont pas été mesurées pour ces mélanges mais nous pouvons tout de même donner leur encadrement. Les mélanges aqueux de Ucon ont un σ compris entre 40 et 45 mN/m et le mélange aqueux de PEG un σ compris entre 36 et 38 mN/m. Ces estimations sont données sans prendre en compte la présence de sel, qui a tendance à relever la valeur de σ de quelques 1/100. Les suspensions sont préparées de la même manière que pour les billes : par immersion lente des fibres puis homogénéisation de la suspension dans un bécher incliné en rotation lente.

4.2 Pincement d'un pont capillaire

4.2.1 Observations et comparaison au cas newtonien

Les ponts capillaires de suspensions fibrées sont réalisés suivant le même protocole qu'utilisé dans le chapitre 2. Cependant, la variabilité de la dynamique entre deux événements de pincement étant très nettement plus élevée que pour les billes, nous avons répété

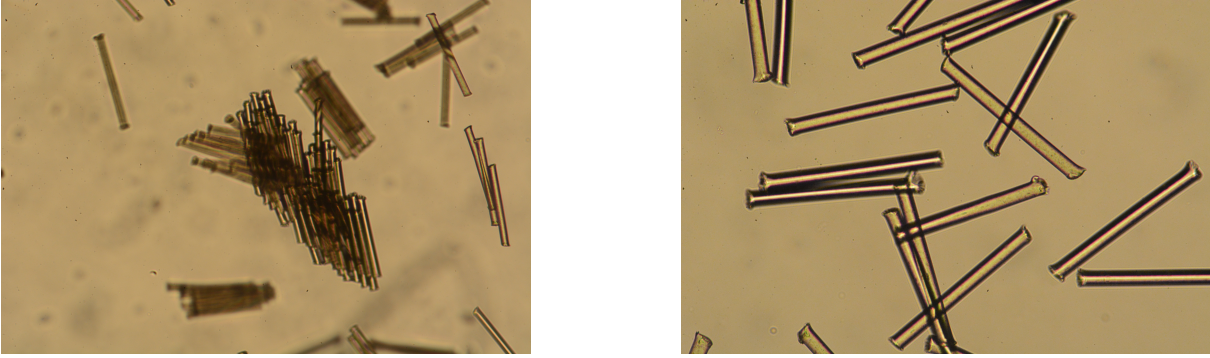


FIGURE 4.1 – Gauche : fibres telles que reçues, organisées en fagots. Droite : fibres après agitation dans l’eau distillée.

l’expérience vingt fois pour chaque fraction volumique. La figure 4.3 compare les formes de ponts capillaires typiquement observées pour des concentrations volumiques $\phi = 2\%$, 8.7% et 24% à celles observées pour un liquide newtonien suffisamment visqueux pour être dans le régime de Stokes ($\eta_0 = 2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, *i.e.* $Oh \sim 8$). Les formes sont comparées à trois diamètres minimum différents : $h_{\min} = 2.5 \text{ mm}$, 1 mm et 0.2 mm . De la même manière que pour les billes, les ponts capillaires de suspensions de fibres ont une forme d’autant plus proche de celle du liquide newtonien que le diamètre du pont est grand et la fraction volumique faible. Cependant d’importantes différences sont à noter. Ici, les fractions volumiques sont bien plus faibles que pour des billes et les déviations interviennent dès quelques $1/100$ de fibres en suspension. Par ailleurs, la fraction volumique maximale pratiquement « manipulable » se situe autour de 24% .

Clairement, le rapport d’aspect des particules a une influence majeure sur le pincement. Nous pouvons par ailleurs constater l’alignement des fibres dans l’écoulement comme montré sur la figure 4.2. Ce constat est au moins valable pour de faibles fractions volumiques. À des fractions plus élevées, les visualisations ne sont pas en mesure de révéler l’organisation des fibres au sein de l’écoulement.

Cette influence ne se manifeste pas uniquement sur la dynamique de pincement typique à chaque fraction volumique. Elle augmente aussi considérablement les fluctuations entre chaque pincement d’une même suspension. Les 3 pincements de la figure 4.4 (pris aléatoirement parmi 20) illustrent cette fluctuation pour $\phi = 24\%$. La forme du pont capillaire est très variable et témoigne de la variation dans l’orientation des particules au sein de l’écoulement. Dès un diamètre $h_{\min} = 2.5 \text{ mm}$, nous devinons ce qui s’apparente à des paquets de fibres qui viennent déformer l’interface du pont capillaire. Ces variations restent tout aussi marquées à l’approche de la rupture. Pour un diamètre minimal de 0.2 mm , le filament de suspension restant n’est plus forcément orienté selon le sens de la gravité. Pour cette concentration relativement élevée, nous pouvons discerner une organisation en chaîne des fibres restant dans le col du pont capillaire. De manière similaire, les temps de pincements sont très affectés par la présence de fibres. À un même diamètre minimal de 1 mm , le temps restant jusqu’à la rupture, $t_0 - t$, peut varier d’un facteur 2

Plus quantitativement, la figure 4.5 compare les évolutions du diamètre minimal du pont jusqu'à la rupture pour la suspension à 24% ($\eta_0 = 0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) et le liquide newtonien ($\eta_0 = 2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$). Pour ce dernier, la reproductibilité est très élevée ; les 5 réalisations sont indiscernables sur l'ensemble de l'évolution, représentée ici depuis $h_{\min} = 3 \text{ mm}$ (voir figure 4.5a). Au contraire, les 23 expériences de pincement réalisées à $\phi = 24\%$ montrent une forte dispersion (voir figure 4.5b) : nous constatons un facteur trois entre les temps de ruptures extrêmes. Les fluctuations des taux de pincements sont en fait plus importantes encore puisque, comme l'indique l'enchevêtrement des courbes, des pincements initialement lents peuvent devenir plus rapide que les autres et inversement. Enfin notons qu'il ne semble pas y avoir de dérive de la dynamique après plusieurs répétitions de l'expérience, comme l'absence d'ordre relatif à leur chronologie (encodée par l'éclaircissement des courbes) permet de juger. Bien que tous ces pincements aient lieu en régime de Stokes, la très grande variabilité des formes et des vitesses de pincements des suspensions de fibres concentrées ne permet pas d'identifier de régime visqueux effectif. Cette variabilité pour part liée à la valeur de $l = 310 \mu\text{m}$ (comparable aux billes sphériques de $218 \mu\text{m}$, pour lesquelles le seuil d'apparition des effets discrets était en effet très fortement couplé à la taille initiale de la buse h_0), mais aussi probablement à la forme des particules. Cette variabilité rend la mesure d'une viscosité effective particulièrement délicate. Nous choisissons donc, pour les suspensions fibrées, de nous concentrer sur les temps de pincement, et de comparer ces temps à celui d'un liquide visqueux newtonien.

4.2.2 Temps de pincement

L'expérience d'aminçissement de pont capillaire est donc étendue à des fractions volumiques allant de 1.5% à 24% (voir figure 4.6). La viscosité du liquide suspensé est la même pour tous les ϕ , excepté pour $\phi = 24\%$, où elle est plus faible pour faciliter la préparation et limiter le temps d'homogénéisation de la suspension (la tension de surface reste proche). Contrairement à la figure 4.5 où l'origine des temps est prise à la rupture,

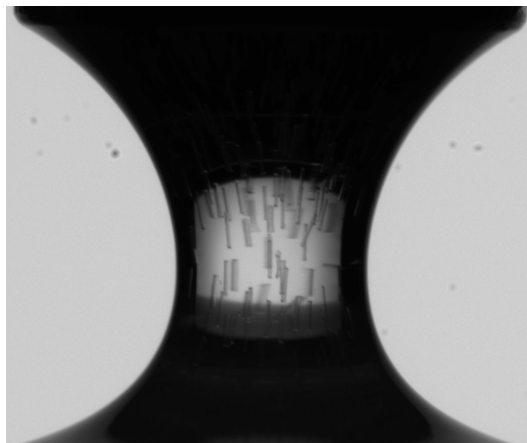


FIGURE 4.2 – Visualisation permettant de mettre en évidence l'alignement des fibres au sein de l'écoulement ($\phi = 1\%$).

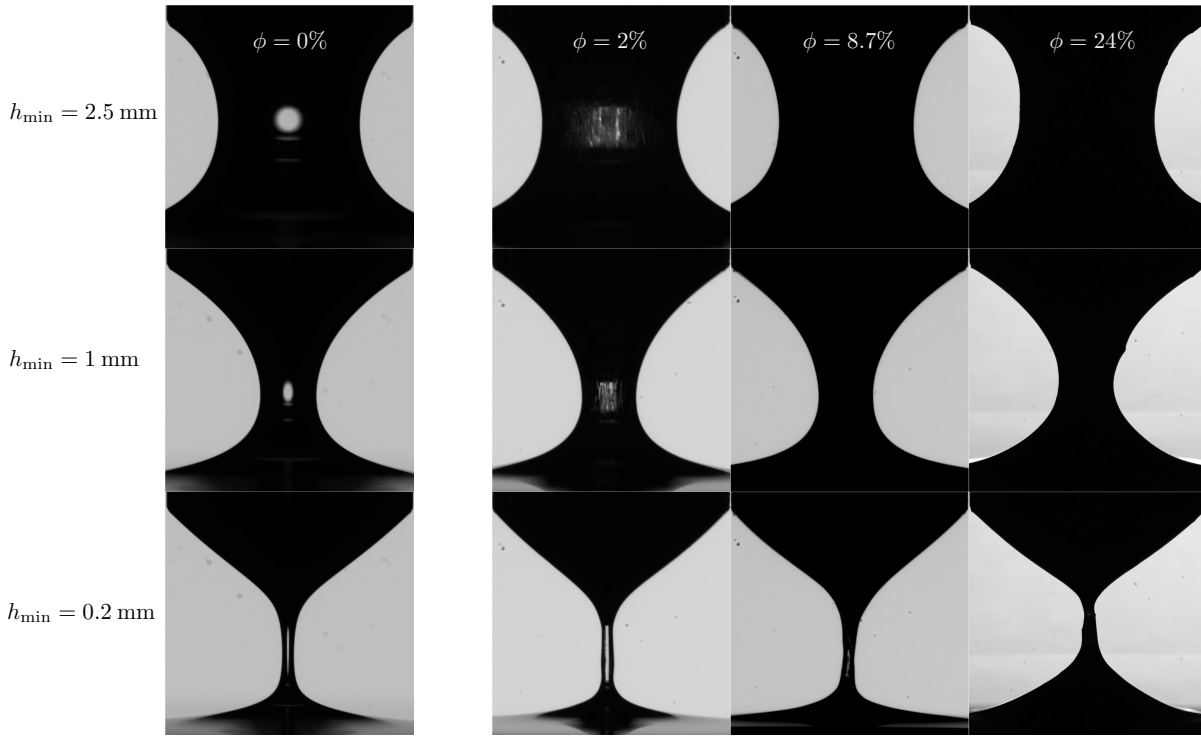


FIGURE 4.3 – Pincement de ponts capillaires illustré pour des diamètres minimaux $h_{\min} = 2.5, 1$ et 0.2 mm. La séquence de gauche montre un liquide newtonien de viscosité ($\eta_0 = 2.88$ Pa \cdot s). Celle de droite montre une suspension de fibres à des fraction volumique $\phi = 2\%$, 8.7% et 24% dans un liquide newtonien (de viscosité $\eta_0 = 2.88$ Pa \cdot s pour les deux premières et $\eta_0 = 0.25$ Pa \cdot s pour la dernière). Toutes les dynamiques sont limitées par la viscosité ($Oh \gtrsim 1$). L'image encadrée en rouge est une visualisation permettant de mettre en évidence l'aligement des fibres au sein de l'écoulement ($\phi = 1\%$).

nous représentons désormais chaque évolution en prenant comme origine des temps l'instant auquel $h_{\min} = 2.5$ mm. La valeur 2.5 mm est choisie car c'est la plus grande valeur accessible et permise pour toutes les expériences. Cette représentation illustre mieux la variabilité des temps de pincement. Elle permet aussi de représenter une évolution moyenne sur l'ensemble des réalisations de pincements (calculée en considérant $h_{\min} = 0$ après rupture).

Comme discuté pour $\phi = 24\%$, nous constatons que les évolutions de $h_{\min}(t)$ sont dispersées, et ce caractère est de plus en plus marqué à mesure que la fraction volumique augmente. En effet, si les différentes répétitions sont relativement bien superposées pour $\phi = 2\%$, le faisceau de courbes de $h_{\min}(t)$ ne cesse de s'élargir avec la fraction volumique, pour être totalement dispersé à $\phi = 24\%$. Pour caractériser ces tendances, nous considérons le temps moyen $t_{2.5\text{ mm}}$ et son écart type calculé sur 15 réalisations à la figure 4.6.

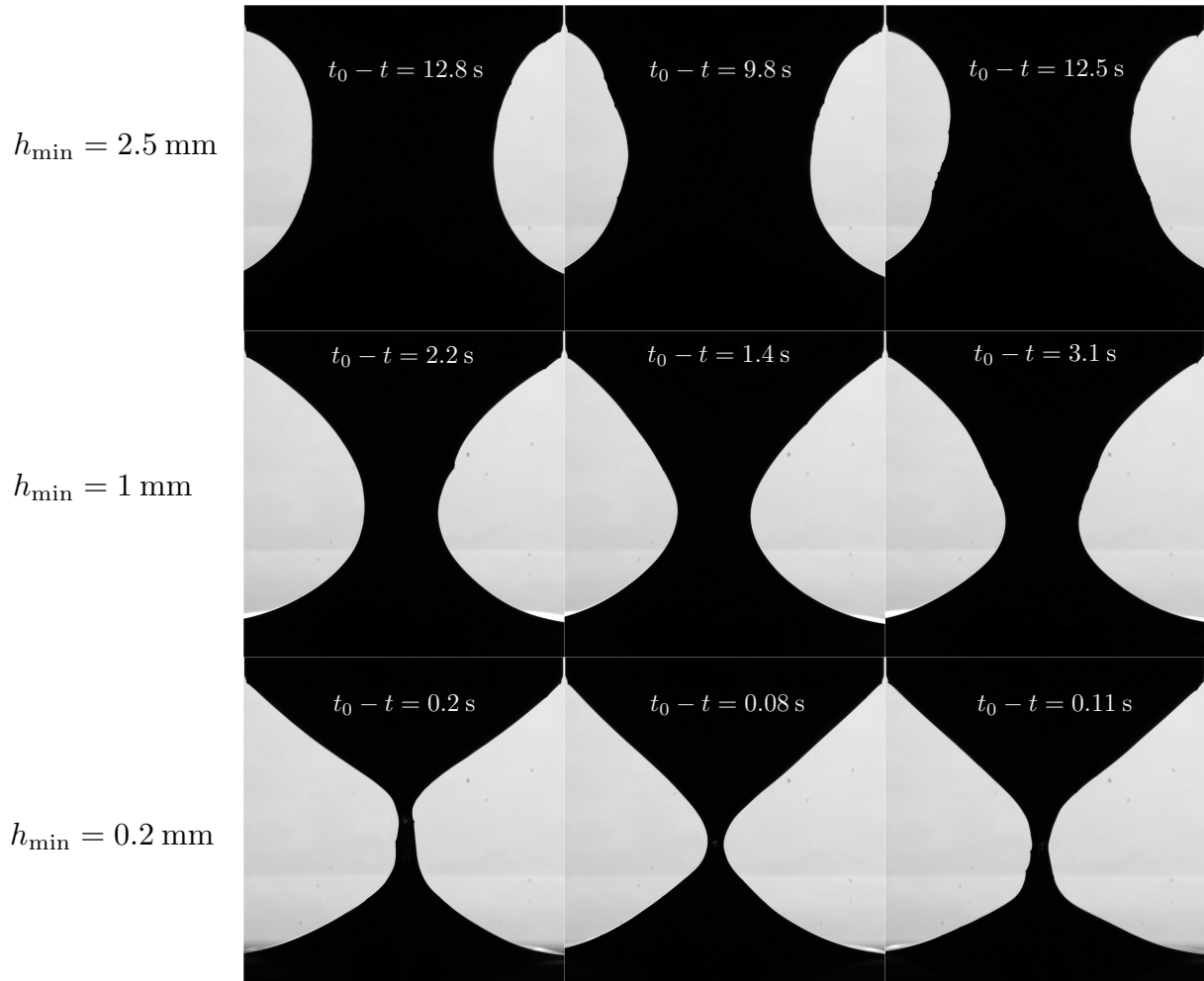


FIGURE 4.4 – Trois réalisations du pincement d'une suspension de fibres à une fraction volumique $\phi = 24\%$. Le temps avant la rupture du pont capillaire est indiqué sur chacune des photographies ($\eta_0 = 0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$).

La figure 4.7 rassemble les temps de pincement $t_{2.5 \text{ mm}}$ mesurés pour les différentes fractions volumiques. Le temps reporté pour la suspension à $\phi = 24\%$ est affecté du rapport de viscosité entre le fluide suspendant utilisé pour toutes les autres fractions volumiques et celui utilisé pour cette suspension à 24% (*i.e.* $2.88/0.25$). Cette correction est justifiée par le nombre de Ohnesorge ($Oh \gtrsim 1$), assurant que la dynamique de pincement est limitée par la viscosité. Elle suppose aussi que la tension de surface et la déformation des fibres soient similaires entre le liquide de $0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ et celui de $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. Le premier point est vérifié à 15% près. Nous ne sommes pas capable de quantifier le second effet, cependant la mesure corrigée est bien alignée avec les mesures brutes, ce qui suggère que cette correction est pertinente. Le temps mesuré croît de manière monotone avec ϕ , de façon analogue au cas des particules sphériques, bien que pour les fibres, l'augmentation soit beaucoup plus forte avec ϕ . Nous observons en effet un facteur environ 100 entre le liquide pur et $\phi = 24\%$. Il semblerait donc que le temps de pincement soit dominé par l'accroissement de la dissipation due à la présence des fibres. Cependant, comme nous

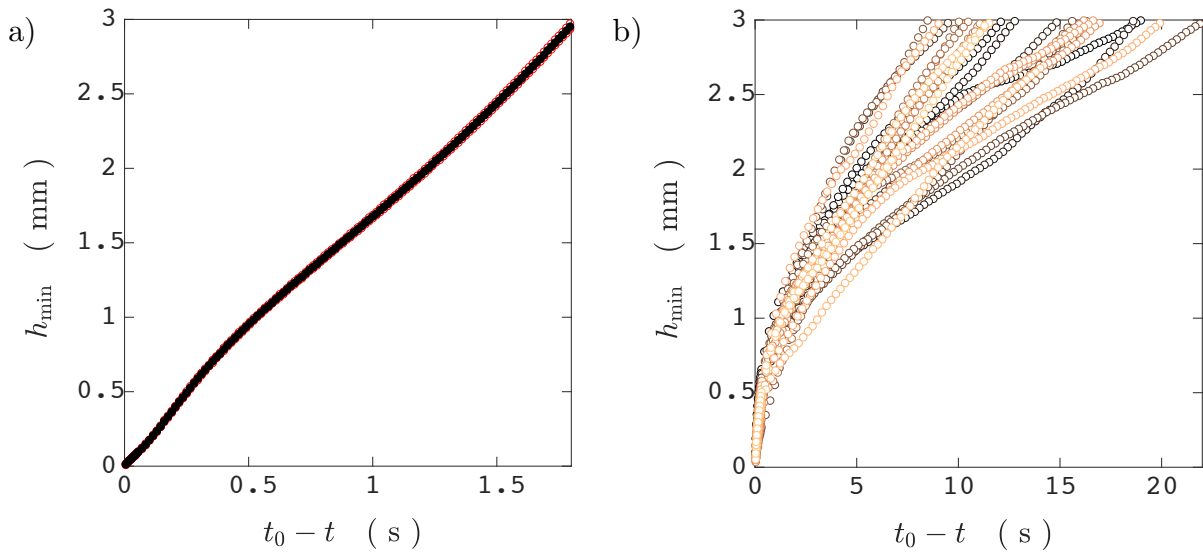


FIGURE 4.5 – a) Évolution du diamètre minimal $h_{\min}(t)$ pour 5 expériences avec un liquide newtonien de viscosité $\eta_0 = 2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$. Les points de mesures des cinq évolutions (en rouge) sont masqués par leur moyenne (\bullet) du fait de la grande reproductibilité. b) Même expérience réalisée pour 23 observations de pincement, pour une suspension à $\phi = 24\%$ ($\eta_0 = 0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$). L'éclaircissement des courbes suit la chronologie des 23 expériences.

l'avons vu pour les ϕ élevés, les dynamiques de pincement ne laissent pas apparaître de régime newtonien effectif, mais différent au contraire, à tout temps et fortement, du cas newtonien. Afin d'isoler la contribution de la rhéologie dans l'écoulement élongationnel associé au pincement, nous réalisons donc une expérience plus adaptée, et nous confronterons les temps de pincement des ponts capillaires à ces nouvelles mesures à la section 4.5.

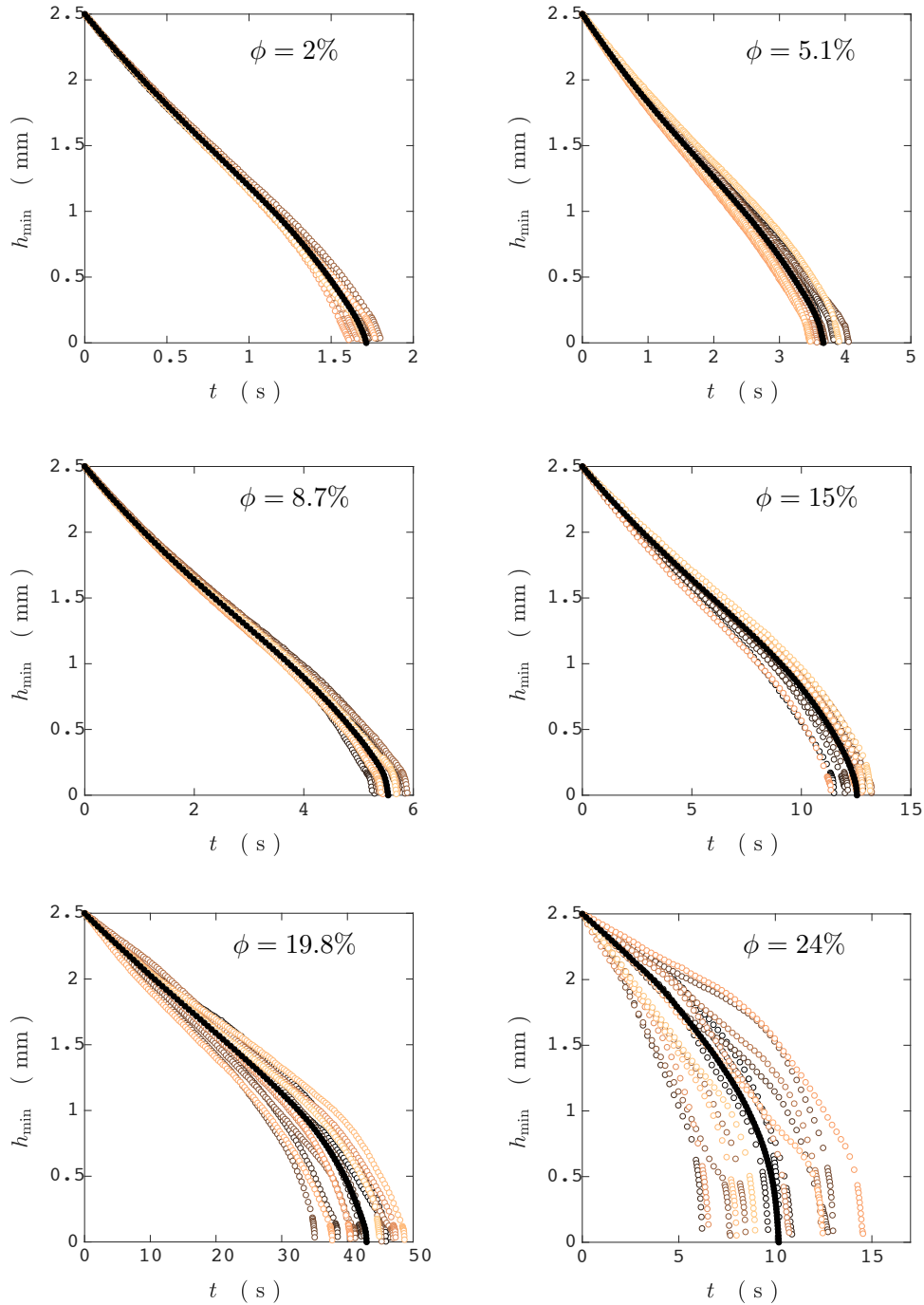


FIGURE 4.6 – Évolution de $h_{\min}(t)$ pour 15 pincements à différentes fractions volumiques ($2\% \leq \phi \leq 24\%$) et depuis la même valeur de $h_{\min} = 2.5$ mm. Les liquides suspendants ont la même viscosité ($\eta_0 = 2.88$ Pa \cdot s) excepté pour $\phi = 24\%$ ($\eta_0 = 0.25$ Pa \cdot s). Pour chacune des fractions volumiques, la moyenne calculée en considérant $h_{\min} = 0$ après la rupture est représentée (\bullet). Le temps de pincement depuis $h_{\min} = 2.5$ mm jusqu'à $h_{\min} = 2.5$ 0 mm définit $t_{2.5 \text{ mm}}$.

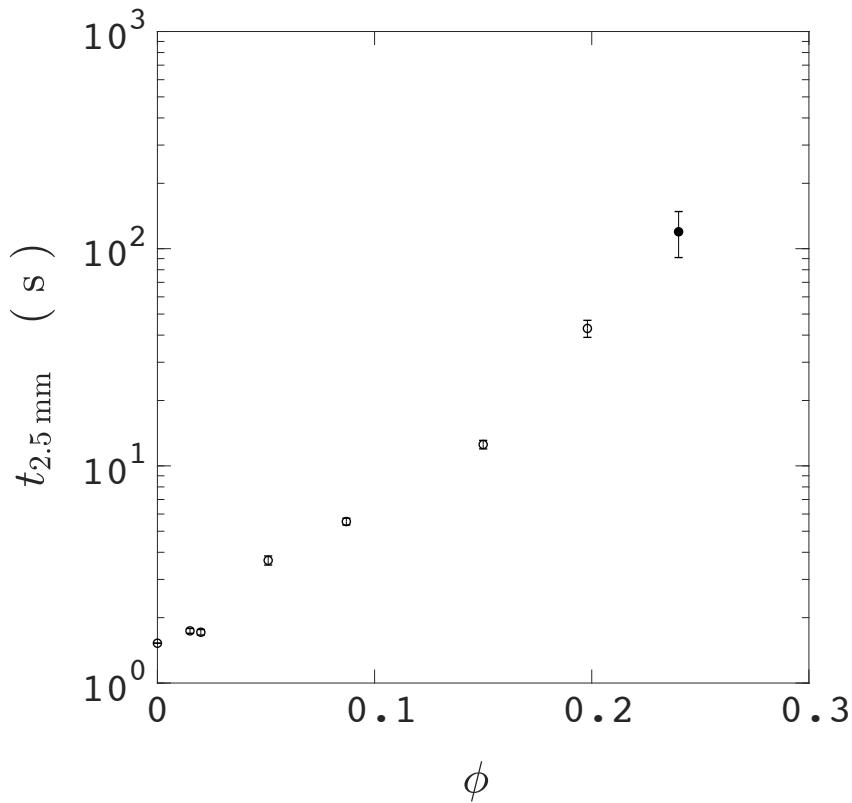


FIGURE 4.7 – Temps de pincement depuis $h_{\min} = 2.5 \text{ mm}$ jusqu'à 0 mm en fonction de la fraction volumique en fibres. Pour $\phi = 24\%$, le temps représenté est multiplié par le ratio $2.88/0.25$, afin de compenser la plus faible viscosité du liquide suspendant ($\eta_0 = 0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ au lieu de $\eta_0 = 0.25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ pour les autres ϕ). Chaque valeur moyenne est affectée de son écart type sous forme de barre d'erreur.

4.3 Rhéologie élongationnelle

Pour s'affranchir du couplage complexe entre la rhéologie et les effets capillaires lors du pincement d'un pont, nous retournons vers la configuration de jet étiré par la gravité, pour laquelle il est possible d'étudier un système grand devant la taille des fibres et de limiter l'influence de la capillarité. L'objectif est de caractériser la différence entre la viscosité élongationnelle et la viscosité de cisaillement simple.

4.3.1 Mesures

Le dispositif et le protocole sont identiques à ceux utilisés pour la mesure de la viscosité élongationnelle des suspensions de particules sphériques (voir section 3.2). Le diamètre de la buse est $h_0 = 11.6 \text{ mm}$ soit plus de 30 fois la longueur l des fibres. Deux liquides newtoniens sont utilisés pour suspendre les fibres. Ce choix est déterminé par essentiellement deux contraintes :

- La première des contraintes concerne la longueur visco-gravitaire Z . Elle doit être plus grande que le diamètre de la buse mais suffisamment courte pour la précision de la visualisation et surtout pour qu'elle ne soit pas perturbée par la fragmentation. Nous choisissons donc de préparer les suspensions dans un liquide de viscosité $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ pour $\phi < 10\%$ et $0.62 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ pour $\phi > 10\%$.
- À partir d'environ 10% de fibres en suspension dans un liquide de $2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$, le temps d'homogénéisation d'un volume de suspension (environ 100 mL) devient rédhibitoire si l'on veille bien à ne pas introduire d'air lors du mélange de la suspension.

Enfin, le nombre de Sperm, $S_p = 128\eta_0\dot{\gamma}(l/d)^4/[E\ln(2l/d)]$ (où E est le module d'Young du matériaux de l'ordre du GPa) caractérisant la flexion des fibres, calculé pour le de taux de cisaillement typique dans le jet est $\sim 10^{-4}$. Cette valeur est comparable à ce que l'on peut estimer dans le cas du pont capillaire et nous informe que pour les liquides utilisés, la flexion d'une fibre isolée dans l'écoulement est négligeable.

La figure 4.8 présente deux exemples de profils de vitesse, mesurés pour une suspension à 1% et une suspension à 20% . Une photographie typique du jet accompagne chaque

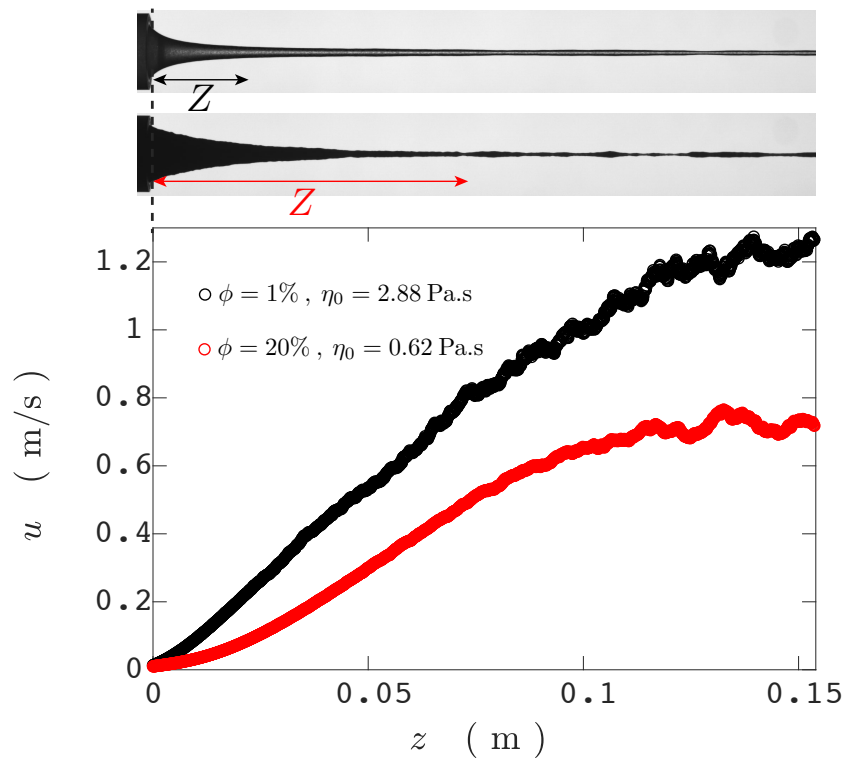


FIGURE 4.8 – Profils de vitesse le long d'un jet de suspension de fibres pour $\phi = 1\%$ ($\eta_0 = 2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) et pour $\phi = 20\%$ ($\eta_0 = 0.62 \text{ Pa} \cdot \text{s}$). Les vitesses sont mesurées à partir du diamètre $h(z)$ et du débit (**méthode 2**, voir chapitre 3) en moyennant sur 10 profils décorrélés. Au-dessus de ces profils sont présentées, à l'échelle, une image typique du jet pour chaque suspension. La longueur visco-gravitaire $Z = (9\eta^2/\rho^2g)^{1/3}$ mesurée sur ces profils y est superposée.

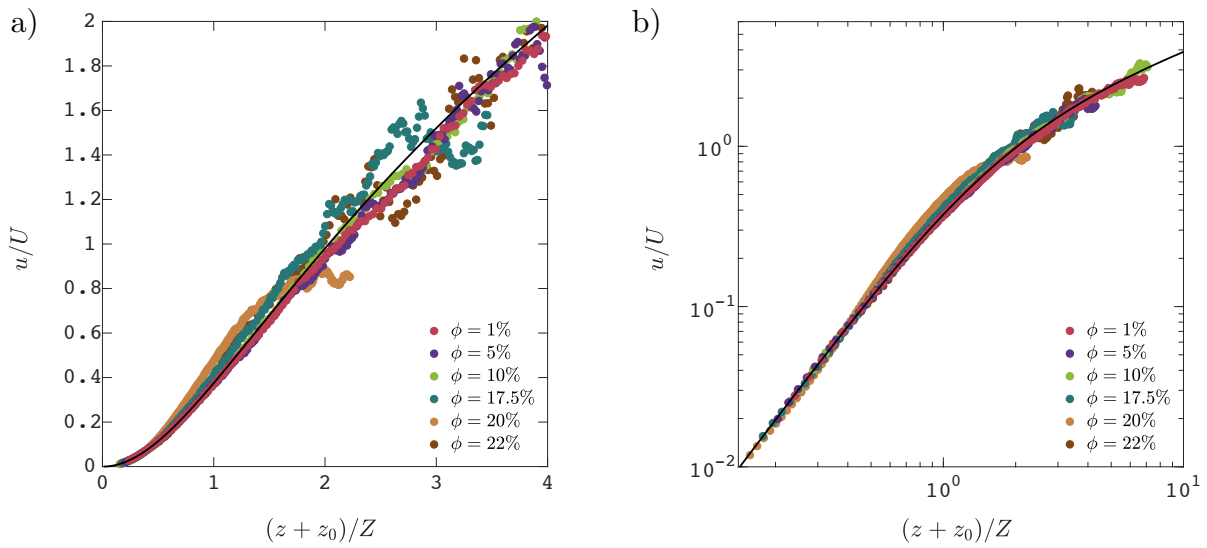


FIGURE 4.9 – a) Profils de vitesse adimensionnés pour quelques concentrations volumiques choisies accompagnés du profil de vitesse théorique d’un jet newtonien (loi 3.12) (—). b) Mêmes données représentées en coordonnées logarithmiques.

profil. Alors que la suspension la plus diluée présente une interface très lisse et légèrement modulée par des instabilités de type Plateau-Rayleigh loin de la buse, le jet de suspension plus concentrée a une interface très irrégulière. Pour cette même suspension, le profil d’épaisseur présenté sur la photographie est très affiné au loin, mais d’autres clichés laissent néanmoins apparaître un profil beaucoup plus épais et modulé. À $\phi = 20\%$, le profil du jet loin de la buse est donc moins stable que pour la suspension diluée.

La même mesure est effectuée pour une fraction volumique en fibres s’étalant de 1% à 22%. Quelques uns des profils adimensionnés sont présentés sur la figure 4.9, pour une vitesse initiale à la buse de $u_0 = 0.01$ m/s et $u_0 = 0.05$ m/s (uniquement pour $\phi = 22\%$). Les profils se superposent les uns aux autres par ordre de fraction volumique décroissante. Ils s’ajustent très bien sur le profil de vitesse théorique jusqu’à ce que le jet se fragmente. Ces mêmes données tracées en échelles logarithmiques (voir figure 4.9b) montrent que les profils de vitesse sont bien paraboliques pour $z \ll Z$, et sur au moins une décade et demi de vitesse, comme attendu d’un liquide newtonien. Dans le jet, la rhéologie de nos suspensions de fibres peut donc être considérée comme effectivement newtonienne. Cela suggère que les fibres sont orientées sur une distance très courte depuis la buse, puis demeurent alignées avec le jet tout au long de son étirement, comme nous le discuterons dans la section suivante (4.4). Par ailleurs, cela permet de mesurer une viscosité effective élongationnelle.

Les viscosités élongationnelles mesurées à partir des profils sont présentées sur la figure 4.10. À chacun des profils expérimentaux correspond une viscosité qui est reportée sur la figure. Les barres d’erreurs reportées sur cette figure correspondent à une erreur de 5% sur l’estimation de la viscosité (liée à l’incertitude sur l’ajustement du profil de vitesse). La viscosité croît continuellement jusqu’à un facteur 40 à $\phi = 22\%$ et semble près de diverger.

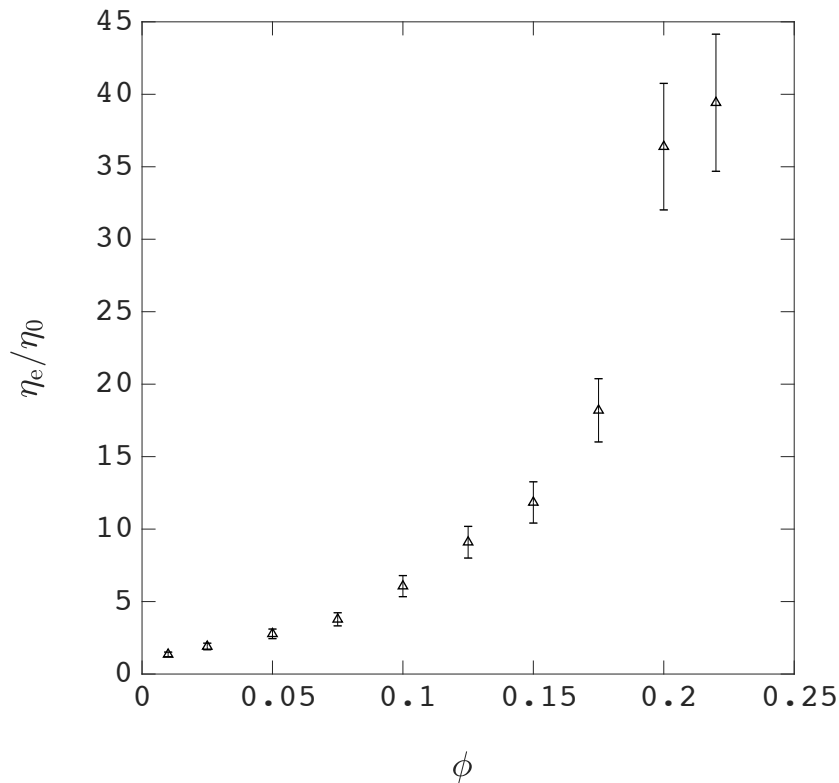


FIGURE 4.10 – Viscosités mesurées dans un écoulement élongationnel

4.3.2 Comparaison à la rhéologie de cisaillement

En parallèle des mesures de viscosité élongationnelle, nous réalisons des mesures de viscosité de cisaillement.

Les mesures de viscosités de cisaillement sont toujours faites le même jour que l'expérience de jet et avec le même échantillon. Une quantité d'environ 30 g est placée dans la cuve du rhéomètre et la suspension fibrée est cisailée dans un entrefer dont l'épaisseur est variée de 2.5 à 5 mm. Pour une mesure à taux de cisaillement constant, un couple constant est observé, au bout d'une déformation d'ordre 1. Toutes les mesures présentées sont donc faites après avoir pré-cisailé la suspension. La viscosité est mesurée sur la gamme de taux de cisaillement $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ à 10 s^{-1} (voir figure 4.11). Sur l'intervalle 1 s^{-1} à 10 s^{-1} correspondant au taux d'élongation $-u\partial_z h/h$ observé dans les jets, la viscosité est pratiquement indépendante de $\dot{\gamma}$, jusqu'à des concentrations d'environ 10%. Une dépendance au taux de cisaillement est en revanche bien visible pour les concentration plus élevées, comme déjà observé par Bounoua *et al.* [10, 11]. Pour une suspension de 20% en fibres, elle peut varier d'environ 50% sur la plage de $\dot{\gamma}$ d'intérêt. Toutes les viscosités mesurées sont néanmoins indépendante de la valeur de l'entrefer. Même à $\phi = 20\%$, la différence mesurée entre un entrefer de 2.5 et un entrefer de 5mm n'est que de l'ordre du 1/100. Cette observation suggère que les mesures sont bien réalisées dans la limite $l/e \ll 1$ (où e est l'entrefer) et

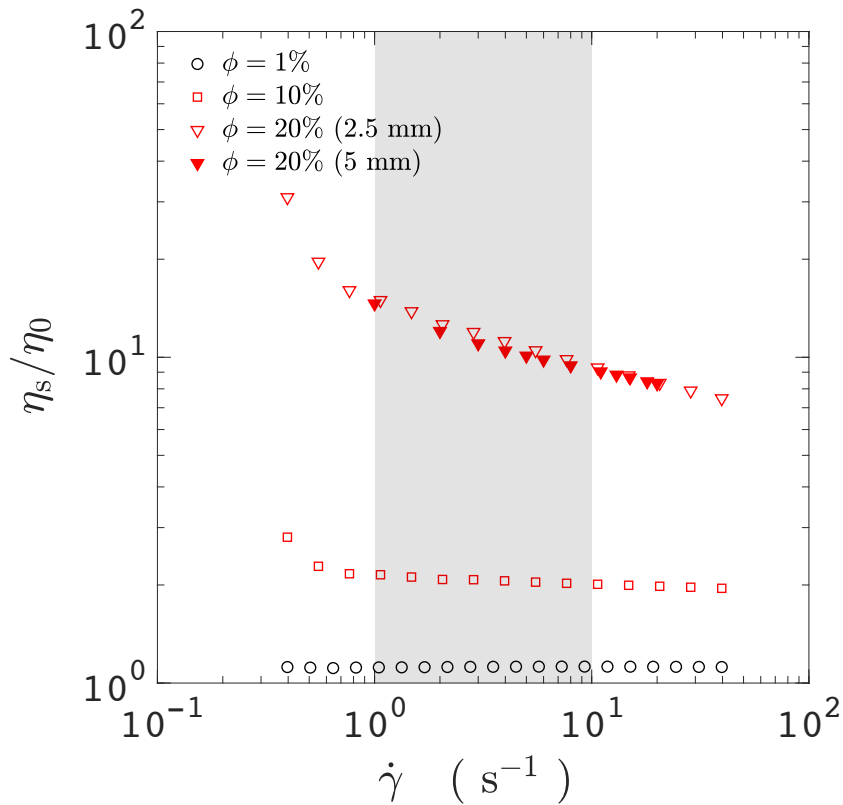


FIGURE 4.11 – Mesures de viscosités de cisaillement réalisées avec le rhéomètre immergé décrit à la section 3.1. L’indépendance à la taille de l’entrefer est vérifiée pour la suspension la plus concentrée ($\phi = 20\%$)

que les effets de glissement à la paroi sont négligeables. Pour chaque ϕ , la valeur de viscosité retenue est la moyenne sur l’intervalle de $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ à 10 s^{-1} (grisé sur la figure 4.11).

Toutes les mesures sont répertoriées avec les viscosités mesurées dans un écoulement élongationnel sur la figure 4.12a. De la même manière que la viscosité élongationnelle η_e , la viscosité de cisaillement η_s est une fonction croissante de ϕ , qui n’augmente que faiblement jusqu’à $\phi \simeq 15\%$ où la viscosité est 3 fois plus importante que celle du liquide suspendant. La croissance est ensuite plus forte. A $\phi = 22\%$ le ratio η_s/η_0 vaut typiquement 10. Mais sur toute la gamme de fractions volumiques explorées, le ratio reste systématiquement inférieur au ratio η_e/η_0 mesuré dans un écoulement élongationnel, comme on peut le voir sur la figure 4.12b.

En effet, le rapport de ces deux viscosités, η_e/η_s est une fonction croissante de ϕ jusqu’à une fraction volumique d’environ 10%. Il semble ensuite atteindre un plateau autour de la valeur $\eta_e/\eta_s \simeq 3$. Contrairement aux suspensions de particules sphériques ou même aux liquides newtoniens pour lesquels la viscosité pour ces deux écoulements reste inchangée $\eta_e/\eta_s = 1$, les fibres en suspension dans un liquide newtonien provoquent une nette augmentation de la viscosité élongationnelle relativement à celle de cisaillement. Afin

de caractériser de manière plus complète la rhéologie des suspensions fibrées, les mesures de viscosités auraient pu s'accompagner de celles des contraintes normales [85]. Cependant, le dispositif utilisé ne nous permet pas d'y accéder de manière assez fine.

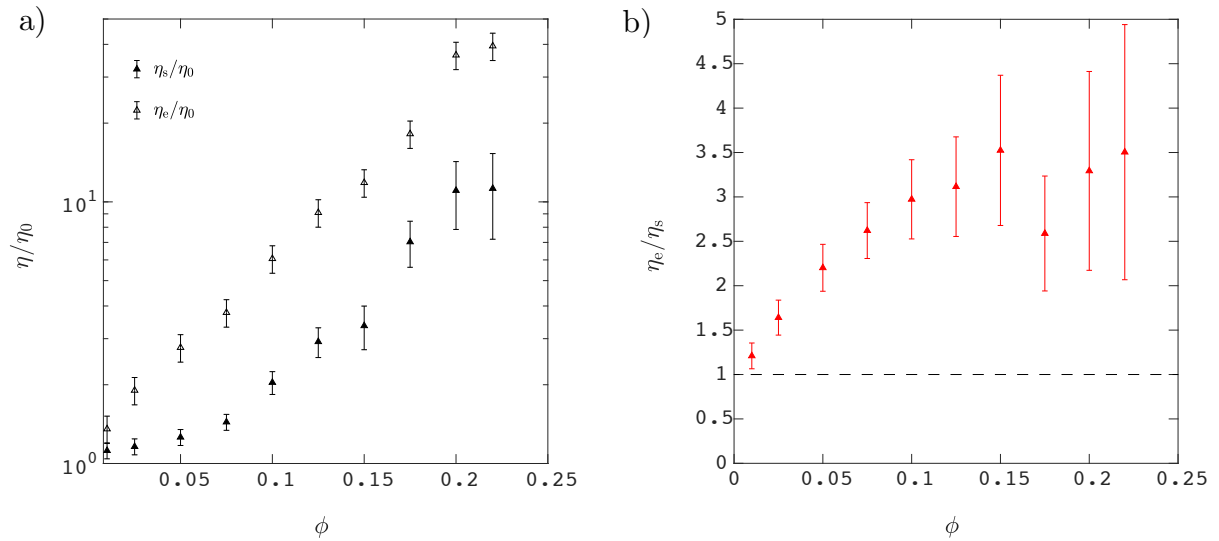


FIGURE 4.12 – a) Résumé des viscosités mesurées en écoulement de cisaillement et élongationnel accompagnées de leurs barres d'erreur en coordonnées semi-logarithmiques. b) Ratio de ces deux viscosités. La ligne pointillée indique le cas d'un liquide newtonien pour lequel $\eta_e/\eta_s = 1$.

4.4 Comparaison aux théories et mesures existantes

Pour une suspension suffisamment peu concentrée pour que les fibres parviennent à s'aligner avec l'écoulement, le cas d'un écoulement purement élongationnel est en fait plus simple que celui d'un écoulement de cisaillement, car l'orientation des fibres est connue : elles sont toutes parallèles à la direction d'étirement. Batchelor a ainsi pu obtenir une expression explicite de la viscosité élongationnelle en fonction des paramètres d'une suspension de fibres indéformables, en supposant les fibres alignées avec l'étirement. Nous comparons ici nos mesures à ces prédictions et à des mesures de la littérature sur des fibres de très grand rapport d'aspect.

4.4.1 Prédictions théoriques

Afin de préciser les prédictions de Batchelor, ses hypothèses et les différentes limites pour lesquelles il exprime la viscosité, nous reprenons ici les principales étapes de son calcul [2, 3]. Il considère un écoulement purement élongationnel selon la direction $\mathbf{e}_3 \equiv \mathbf{e}_z$ (nous adoptons ici les notations $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3)$ pour les directions) dont le tenseur de déformation s'écrit $\mathbf{E} = -\dot{\epsilon}/2\mathbf{e}_1\mathbf{e}_1 - \dot{\epsilon}/2\mathbf{e}_2\mathbf{e}_2 + \dot{\epsilon}\mathbf{e}_3\mathbf{e}_3$. Il suppose que toutes les fibres sont alignées selon \mathbf{e}_3 , néglige les effets d'inertie et adopte la décomposition des contraintes suivante

$$\tau_{ij} = -p\delta_{ij} + 2\eta_0 E_{ij} + 3(\mathbf{e}_i\mathbf{e}_j - \frac{1}{3}\delta_{ij})\eta_0\dot{\epsilon}\lambda, \quad (4.1)$$

où p est la pression, η_0 la viscosité du liquide suspendant newtonien et λ est le facteur capturant l'amplitude des contraintes dues à la présence des fibres, qu'il convient de calculer pour exprimer η_e . En effet, en remarquant que $3\eta_e\dot{\epsilon} \equiv 2\eta_0(\tau_{33} - \tau_{11})$ suivant l'approche de Trouton (voir 3.2), on obtient $\lambda = \eta_e/\eta_0 - 1$. Le facteur λ est précédé d'un tenseur de norme 1 dont la forme est imposée par la symétrie de l'écoulement. Le dernier terme de cette égalité correspond à la contrainte supplémentaire générée par la présence des fibres dans l'écoulement.

Dans le cas d'une suspension diluée, c'est-à-dire lorsque la distance moyenne entre fibres est grande devant leur longueur l , les interactions entre fibres peuvent être négligées et λ s'obtient alors en sommant les contraintes additionnelles (stresslet) dues à chacune des fibres. L'expression du stresslet [2, 13, 25] donne

$$\lambda = \frac{2}{9} \frac{\phi(l/d)^2}{\ln(2l/d)} f\left(\frac{1}{\ln(2l/d)}\right), \quad (4.2)$$

où la fonction f , obtenue dans la cadre de la théorie du corps mince (slender body) est de la forme $f(x) = \frac{1+0.64x}{1-\frac{3}{2}x} + 1.659x^2 + O(x^3)$. En pratique, f est d'ordre 1. Finalement, la viscosité élongationnelle peut donc se mettre sous la forme

$$\eta_e = \eta_0 \left[1 + \frac{2}{9} \frac{\phi(l/d)^2}{\ln(2l/d)} f\left(\frac{1}{\ln(2l/d)}\right) \right] \quad (4.3)$$

Lorsque ϕ est nul, on retrouve $\eta_e = \eta_0$. La viscosité élongationnelle est égale à la viscosité de cisaillement.

Dans le cas d'une suspension concentrée, à savoir, pour une distance moyenne entre fibres qui est petite devant la longueur l , tout en restant grande devant leur diamètre d , Batchelor [3] dérive une deuxième expression pour l'amplitude de la déviation :

$$\lambda = \frac{4 \phi (l/d)^2}{9 \ln(\pi/\phi)}. \quad (4.4)$$

Contrairement au cas dilué, cette expression rend compte des interactions entre les fibres faisant intervenir leur distance de séparation, ce qui introduit une dépendance logarithmique à ϕ . La relation entre la viscosité du liquide suspendant et la viscosité élongationnelle se met donc sous la forme

$$\eta_e = \eta_0 \left[1 + \frac{4 \phi (l/d)^2}{9 \ln(\pi/\phi)} \right]. \quad (4.5)$$

La limite séparant ces deux régime est donnée par

$$\frac{\phi (l/d)^2}{2\pi \ln(2l/d)} = 1. \quad (4.6)$$

4.4.2 Mesures de la littérature et exploration du régime dilué

Suite aux prédictions de Batchelor, des expériences ont été menées par Mewis et Metzner [63] en 1974 et Pittman et Bayram [75] en 1990. Elles ont été réalisées sur deux dispositifs expérimentaux différents. Le premier dispositif est un cylindre en rotation entraînant

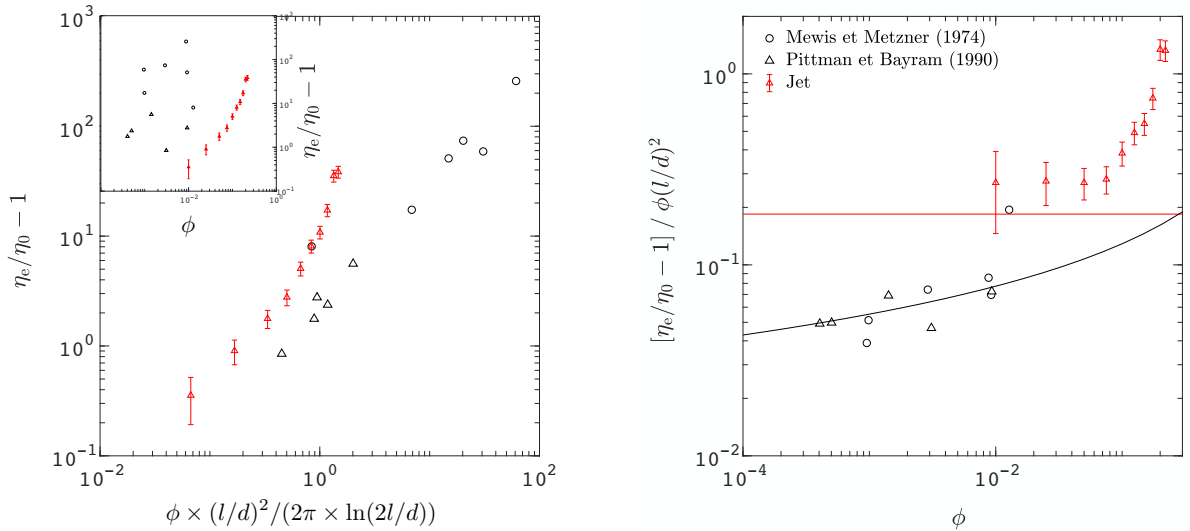


FIGURE 4.13 – a) Écart relatif à la viscosité d'un liquide newtonien en fonction de $l^2/2\pi d^2 \ln(2l/d)\phi$, où $l^2/2\pi d^2 \ln(2l/d)\phi = 1$ délimite les régimes dilué et concentré. Les données tracées rassemblent les mesures présentées précédemment ainsi que des données tirées de Mewis et Metzner [63] et de Pittman et Bayram [75]. L'insert représente l'écart relatif à la viscosité d'un liquide newtonien en fonction de ϕ . b) Valeur de $(\eta_e/\eta_0 - 1)$ compensée de $\phi(l/d)^2$ en fonction de ϕ et prédictions des régimes dilué (—) et concentré (—).

un filament visqueux chargé en fibres et le second utilise la même configuration que celle que nous utilisons. Cependant toutes ces expériences utilisent des fibres de très grand rapport d'aspect (typiquement 100 à 1000) à des fractions volumiques très faibles (0.05 à 1%). Elles concernent donc uniquement le régime concentré.

Les points tirés de ces expériences ainsi que nos données sont rassemblés sur la figure 4.13. Bien que les fractions volumique explorées par Mewis et Metzner [63] et Pittman et Bayram [75] soient jusqu'à plusieurs ordres de grandeur plus faibles que les nôtres, nous constatons que les viscosités sont supérieures (voir l'insert de la figure 4.13a)), comme attendu des prédiction de Batchelor données par les relations 4.3 et 4.5.

Afin de discerner les régime il est plus pertinent de tracer ces données en fonction du critère délimitant les deux régimes défini par l'équation 4.6 (voir figure 4.13a). Nous constatons alors que les jeux de données sont dans la continuité l'un de l'autre et que quelques points se confondent à la limite $\phi(l/d)^2/2\pi\ln(2l/d) \approx 1$. Les points des expériences citées sont donc clairement en régime concentré tandis que nous explorons le régime dilué.

Pour apprécier plus finement la comparaison à la théorie de Batchelor, nous traçons aussi ces viscosités compensées par $\phi(l/d)^2$ sur la figure 4.13b. Nos données s'alignent sur la prédiction du régime dilué avant un décrochage autour de $\phi = 10\%$. Par ailleurs, les données de la littérature suivent bien la prédiction du régime concentré.

Dans les travaux cités, les expériences sont faites avec des fibres de grand rapport d'aspect. Peu nombreuses au sein d'un filament, elles s'alignent aisément avec la direction de l'écoulement. Dans les expériences que nous réalisons, à des concentrations proches de 20%, l'aspect de l'interface des jets formés (voir figure 4.8), suggère que les fibres ne sont plus du tout alignées avec l'écoulement. Pour nos plus hauts ϕ , l'hypothèse d'alignement considéré par Batchelor n'est probablement pas vérifiée. Ceci peut expliquer l'augmentation d'un facteur $\simeq 10$ de $\eta_e/\eta_0 - 1$ observée pour nos données, qui n'est pas reportée dans les données des travaux cités.

En effet, le ϕ auquel la viscosité dévie est autour de 10% et est donc en accord avec le critère typique précisant la limite à laquelle les fibres ne parviennent plus à s'aligner avec l'écoulement du fait des interactions : $\phi(l/d) \sim 1$ (ou de manière équivalente $Nl^2/d \sim 1$, avec N le nombre de fibres par unité de volume). Ici, $\phi \times l/d = 1.1$.

4.5 Retour sur le pont capillaire

Revenons maintenant à l'expérience de pincement d'un pont capillaire présentée en début de chapitre, pour laquelle nous n'avons pas mesuré de viscosité du fait de la prévalence des fluctuations à forte concentration. En se concentrant sur la moyenne et en ignorant les déviations au cas newtonien de la dynamique d'amincissement, il est néanmoins possible d'extraire une viscosité typique des temps de pincements observés.

La figure 4.14 compare le temps moyen de pincement relatif à celui du liquide suspendant, *i.e.* $t_{2.5\text{mm}}/t_{2.5\text{mm}}|_{\phi=0}$, aux viscosités relatives mesurées en écoulement élongationnel et de cisaillement, *i.e.* η_e/η_0 et η_s/η_0 , respectivement. Nous constatons que toutes les données suivent la même tendance et que le temps moyen est beaucoup plus proche de η_e

que de η_s sauf aux très faibles ϕ . Ceci confirme que le temps total de pincement est bien dominé par l'augmentation de la viscosité élongationnelle avec ϕ . La déviation au cas newtonien n'induit donc qu'un très léger raccourcissement de la durée de pincement, qui explique sans doute que les valeurs de $t_{2.5\text{mm}}/t_{2.5\text{mm}}|_{\phi=0}$ soient très légèrement plus faibles que celles de η_e/η_0 pour les ϕ élevés.

Il faut cependant réaliser qu'une influence très modérée de ϕ sur la durée du pincement relativement au cas newtonien ne renseigne pas sur son influence sur les longueurs sélectionnées par la fragmentation, comme nous avons pu le constater avec les suspension de billes, et comme nous allons maintenant le voir pour des fibres.

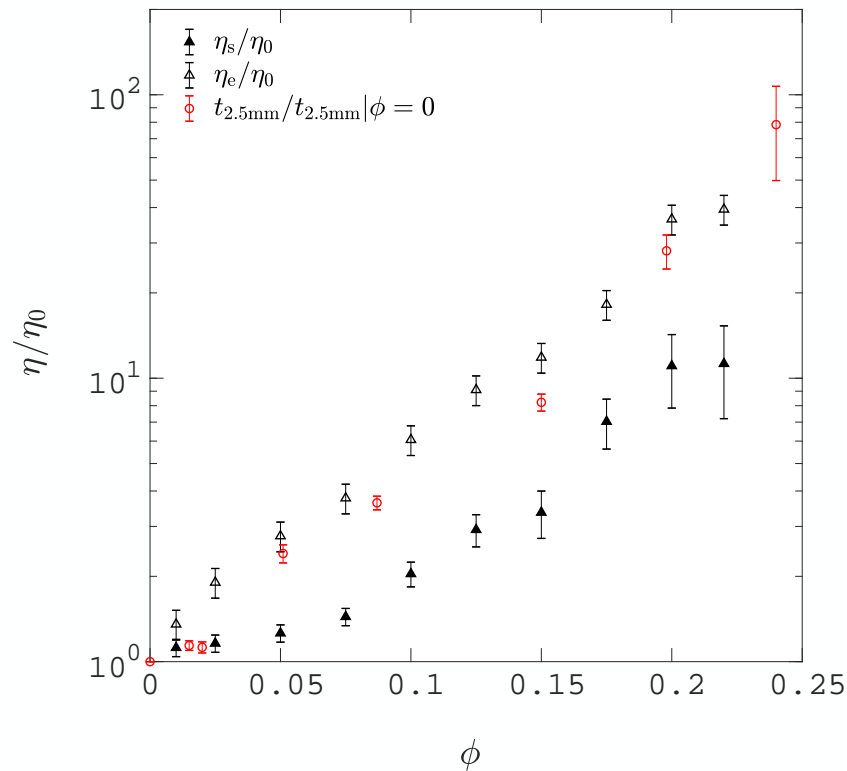


FIGURE 4.14 – Comparatif des viscosités mesurées sous cisaillement (au rhéomètre), sous élongation (dans le jet) et déduites du temps de pincement des ponts capillaires. Les barres verticales indiquent l'incertitude des mesures pour les deux premières et l'écart type des temps de pincement sur 15 réalisations pour la dernière.

4.6 Longueur du jet

Afin de préciser l'influence des fibres en suspension sur les longueurs sélectionnées par la fragmentation, nous nous retournons à nouveau vers le dispositif du jet gravitaire.

Nous présentons ici un pan de la thèse pour lequel nous n'avons réalisé que peu d'expériences et pour lesquelles les paramètres ne sont pas variés de façon à dégager des mécanismes physiques pertinents. Cependant, ils fournissent une première observation quant aux longueurs de jets de suspensions fibrées à ϕ variable et u_0 constant. Ces mesures sont réalisées simultanément avec la mesure des profils d'épaisseur du jet. Pour cela, la prise de vue est réalisée avec une seconde caméra disposée derrière celle utilisée pour capturer les profils. Un comparatif visuel entre un jet de liquide newtonien et un jet de ce même liquide chargé en fibres à la fraction volumique de 20% est présenté sur la figure 4.15. Le constat est clair, alors que le jet formé du liquide monophasique ne se brise pas dans le champ de visualisation, la suspension se brise très proche de la buse et ce alors que, comme nous l'avons mesuré, sa viscosité effective est bien supérieure à celle du liquide newtonien (la viscosité élongationnelle est environ 40 fois supérieure à celle du liquide suspendant, voir 4.14). Comme pour les suspensions de billes, pour des ϕ élevés l'accélération de l'amincissement avant la rupture peut donc prendre le pas sur l'augmentation de la viscosité et conduire à un raccourcissement du jet.

Les mesures des longueurs des jets de suspensions fibrées sont présentées sur la figure 4.16a. L décroît en fonction de la fraction volumique ϕ pour une viscosité donnée. La rupture de pente observée autour de $\phi = 10\%$ est elle, due au changement de viscosité du liquide suspendant, opéré pour les fractions volumiques élevées. Ce changement de liquide (de viscosité plus faible pour les ϕ élevés) a tendance, comme attendu, à raccourcir le jet. La figure 4.16b présente L adimensionnée par $L_0 (= \frac{1}{2} \left(\frac{\alpha \eta_e(\phi) \sqrt{U} u_0}{\sigma} \frac{h_0}{Z} \right)^{4/3} Z)$, la longueur attendue, (obtenue en section 3.3) pour un liquide effectif newtonien de viscosité η_e . Le paramètre α propre à cette configuration n'a pas été mesuré, nous prenons donc la valeur mesurée à la section 3.3 à savoir 30. On alors constater à quel point la longueur du jet est éloignée de celle attendue pour un liquide effectif newtonien (~ 300 fois moins pour $\phi = 20\%$).



FIGURE 4.15 – Comparaison entre un jet de liquide newtonien (0.62 Pa · s, haut) et un jet du même liquide contenant des fibres à la fraction volumique $\phi = 24\%$ (bas). Dans les deux cas, la vitesse initiale à la buse est $u_0 = 0.01$ m/s.

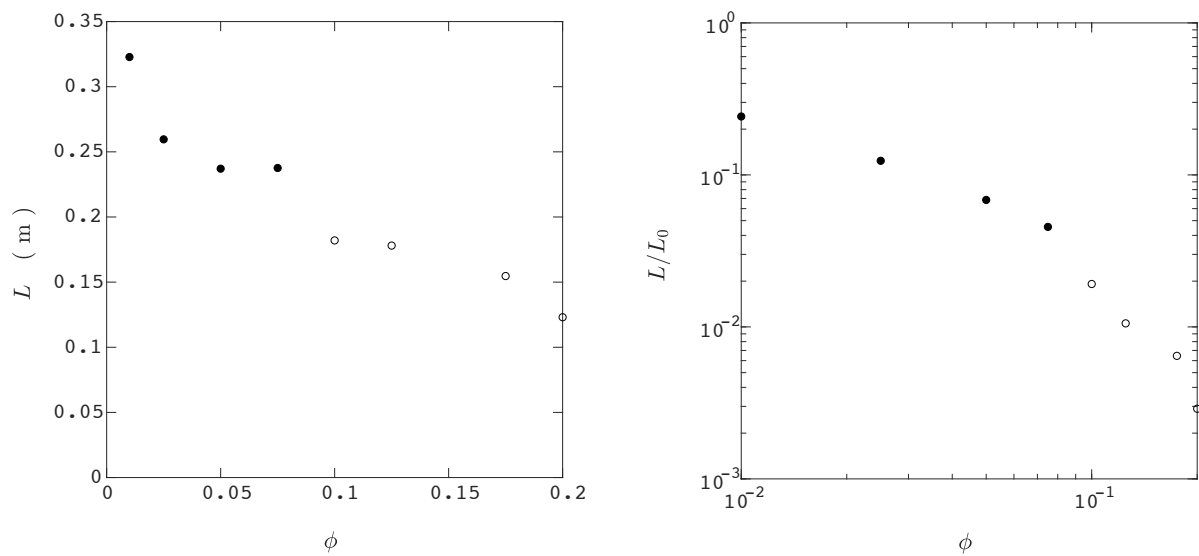


FIGURE 4.16 – a) Longueur du jet en fonction de la fraction volumique de fibres en suspension. Pour les ϕ faibles ($\phi \leq 7.5\%$) la viscosité du liquide ($\eta_0 = 2.88 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) est plus élevée que pour les ϕ élevés ($\eta_0 = 0.62 \text{ Pa} \cdot \text{s}$), ce qui explique le décrochement de L autour de $\phi = 10\%$. b) Longueur adimensionnée par la longueur prédite pour un liquide effectif newtonnien définie à la section 3.3.

Un grand pan de cette thèse s'est intéressé à la fragmentation d'une suspension de particules sphériques. Les expériences menées sur le pincement d'un pont capillaire ont permis de confirmer que l'amincissement suit d'abord une dynamique effective newtonienne, avant d'en dévier en s'accélégrant fortement, jusqu'à rejoindre le taux de pincement typique du liquide suspendant seul. Nous avons pu préciser que cette accélération est liée à des effets de taille finie et intervient lorsque le diamètre minimal s'est réduit à un petit nombre $n(\phi)$ de diamètres de particule d , où $n(\phi)$ est une fonction croissante de la fraction volumique solide ϕ semblant diverger au voisinage de la fraction critique ϕ_c avec un exposant faible proche de $-1/3$. Plusieurs mécanismes de déviation ont été proposés sans qu'il soit possible d'en isoler un.

Nous avons ensuite abordé la question des longueurs sélectionnées par la fragmentation en étudiant un jet capillaire étiré et sa résolution en gouttes. De manière similaire au pont capillaire, nous avons pu distinguer un étirement réparti tout au long du jet et un développement très localisé et accéléré des pincements, spécifique aux suspensions, intervenant au même diamètre seuil $n(\phi)d$ que pour les ponts et précipitant le détachement des gouttes. Dans un premier temps, nous avons montré expérimentalement qu'avant sa localisation l'étirement est identique à celui d'un jet newtonien et que la viscosité effective des suspensions dans cet écoulement élongationnel est similaire à celle mesurée indépendamment en cisaillement. Ceci confirme les résultats de simulations récentes suggérant que le coefficient de Trouton d'une suspension de billes est identique à celui d'un liquide newtonien. Dans un second temps, en modélisant l'amincissement du jet par une phase newtonienne interrompue par une brisure instantanée au diamètre $n(\phi)d$ nous avons expliqué la longueur L du jet mesurée sur une large gamme de débits $h_0^2 u_0$, de viscosités η_0 et de tailles de bille d , couvrant les régimes d'étirement visqueux et inertiel ainsi que les régimes où les effets de taille finie dominent ou non les effets capillaires. Dans un troisième temps, nous avons documenté systématiquement le volume des gouttes formées par la fragmentation, leur forme au moment du détachement et leur éventuelle re-fragmentation.

Enfin, nous avons considéré des suspensions de fibres cylindriques de rapport d'aspect $l/d \sim 10$ en suivant la même approche que pour les billes. Des mesures de la viscosité élongationnelle sur un jet ont complété les mesures de la littérature concernant le régime concentré, confirmé la prédiction théorique de Batchelor pour des fibres alignées en régime

dilué, et permis d'interpréter les temps de pincements mesurés sur des ponts capillaires. Pour ces suspensions, le même paradoxe apparent que pour une suspension de billes a été observé : un jet peut être raccourci par l'ajout de fibres bien qu'elles augmentent fortement sa viscosité.

Ces résultats appellent des développements. À court terme, il s'agira d'incorporer les effets discrets dans la sélection des modes de pincement en vue d'expliquer les longueurs et donc les volumes des gouttes produites. Il s'agira aussi de réaliser des expériences complémentaires étendant nos résultats sur les suspensions de fibres à des rapports d'aspect plus élevés (30 et 100). À plus long terme, des expériences systématiques de jet fibré variant le débit, la viscosité et le rapport d'aspect sont certainement indispensables pour préciser les différences avec le cas des billes et comprendre la fragmentation d'un jet fibré. Ces comparaisons et des observations systématiques avec des particules peu mouillantes pourraient aussi aider à clarifier le mécanisme responsable de l'accélération du pincement et préciser l'état de contraintes des phases solides et liquides à l'interface du jet.

Plus largement, les résultats obtenus sur la base du découplage entre un étirement newtonien et des brisures catastrophiques sont aisément généralisables à toute configuration de jet étiré. L'approche devrait donc être utile à de nombreux procédés d'atomisation et pourrait sans doute être étendue à la fragmentation d'autres milieux divisés, tels que des mousses humides ou des émulsions.

- [1] AMAROUCHENE, Y., BONN, D., MEUNIER, J., AND KELLAY, H. Inhibition of the finite-time singularity during droplet fission of a polymeric fluid. *Physical Review Letters* 86, 16 (2001), 3558.
- [2] BATCHELOR, G. Slender-body theory for particles of arbitrary cross-section in stokes flow. *Journal of Fluid Mechanics* 44, 3 (1970), 419–440.
- [3] BATCHELOR, G. The stress generated in a non-dilute suspension of elongated particles by pure straining motion. *Journal of Fluid Mechanics* 46, 4 (1971), 813–829.
- [4] BATCHELOR, G., AND GREEN, J. The determination of the bulk stress in a suspension of spherical particles to order c^2 . *Journal of Fluid Mechanics* 56, 3 (1972), 401–427.
- [5] BATCHELOR, G., AND GREEN, J.-T. The hydrodynamic interaction of two small freely-moving spheres in a linear flow field. *Journal of Fluid Mechanics* 56, 2 (1972), 375–400.
- [6] BECKER, L. E., AND SHELLEY, M. J. Instability of elastic filaments in shear flow yields first-normal-stress differences. *Physical Review Letters* 87, 19 (2001), 198301.
- [7] BERTRAND, T., BONNOIT, C., CLÉMENT, E., AND LINDNER, A. Dynamics of drop formation in granular suspensions : the role of volume fraction. *Granular Matter* 14, 2 (2012), 169–174.
- [8] BLANC, F., PETERS, F., AND LEMAIRE, E. Local transient rheological behavior of concentrated suspensions. *Journal of Rheology* 55, 4 (2011), 835–854.
- [9] BONNOIT, C., BERTRAND, T., CLÉMENT, E., AND LINDNER, A. Accelerated drop detachment in granular suspensions. *Physics of Fluids* 24, 4 (2012), 043304.
- [10] BOUNOUA, S., LEMAIRE, E., FÉREC, J., AUSIAS, G., AND KUZHIR, P. Shear-thinning in concentrated rigid fiber suspensions : Aggregation induced by adhesive interactions. *Journal of rheology* 60, 6 (2016), 1279–1300.
- [11] BOUNOUA, S., LEMAIRE, E., FÉREC, J., AUSIAS, G., ZUBAREV, A., AND KUZHIR, P. Apparent yield stress in rigid fibre suspensions : the role of attractive colloidal interactions. *Journal of Fluid Mechanics* 802 (2016), 611–633.

- [12] BOYER, F., GUAZZELLI, É., AND POULIQUEN, O. Unifying suspension and granular rheology. *Physical Review Letters* 107, 18 (2011), 188301.
- [13] BURGERS, J. M. On the motion of small particles of elongated form suspended in a viscous liquid. *Kon. Ned. Akad. Wet. Verhand.(Eerste Sectie)* 16 (1938), 113–184.
- [14] BUTLER, J. E., AND SNOOK, B. Microstructural dynamics and rheology of suspensions of rigid fibers. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 0 (2018).
- [15] CASSAR, C., NICOLAS, M., AND POULIQUEN, O. Submarine granular flows down inclined planes. *Physics of fluids* 17, 10 (2005), 103301.
- [16] CASTREJÓN-PITA, J. R., CASTREJÓN-PITA, A. A., THETE, S. S., SAMBATH, K., HUTCHINGS, I. M., HINCH, J., LISTER, J. R., AND BASARAN, O. A. Plethora of transitions during breakup of liquid filaments. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 112, 15 (2015), 4582–4587.
- [17] CHEAL, O., AND NESS, C. Rheology of dense granular suspensions under extensional flow. *arXiv preprint arXiv :1801.03805* (2018).
- [18] CHEN, A. U., NOTZ, P. K., AND BASARAN, O. A. Computational and experimental analysis of pinch-off and scaling. *Physical review letters* 88, 17 (2002), 174501.
- [19] CLANET, C., AND LASHERAS, J. C. Transition from dripping to jetting. *Journal of fluid mechanics* 383 (1999), 307–326.
- [20] CLARKE, N. A differential equation in fluid mechanics. *Mathematika* 13, 1 (1966), 51–53.
- [21] CLARKE, N. The asymptotic effects of surface tension and viscosity on an axially-symmetric free jet of liquid under gravity. *The Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics* 22, 2 (1969), 247–256.
- [22] CLAVAUD, C., BÉRUT, A., METZGER, B., AND FORTERRE, Y. Revealing the frictional transition in shear-thickening suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences* (2017), 201703926.
- [23] COMTET, J., CHATTÉ, G., NIGUÈS, A., BOCQUET, L., SIRIA, A., AND COLIN, A. Pairwise frictional profile between particles determines discontinuous shear thickening transition in non-colloidal suspensions. *Nature communications* 8 (2017), 15633.
- [24] COUSSOT, P., AND GAULARD, F. Gravity flow instability of viscoplastic materials : The ketchup drip. *Physical Review E* 72, 3 (2005), 031409.
- [25] COX, R. The motion of long slender bodies in a viscous fluid part 1. general theory. *Journal of Fluid mechanics* 44, 4 (1970), 791–810.
- [26] DOSHI, P., SURYO, R., YILDIRIM, O. E., MCKINLEY, G. H., AND BASARAN, O. A. Scaling in pinch-off of generalized newtonian fluids. *Journal of non-newtonian fluid mechanics* 113, 1 (2003), 1–27.
- [27] EGGERS, J. Universal pinching of 3d axisymmetric free-surface flow. *Phys. Rev. Lett.* 71 (Nov 1993), 3458–3460.
- [28] EGGERS, J. Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows. *Reviews of modern physics* 69, 3 (1997), 865.

-
- [29] EGGERS, J. Dynamics of liquid nanojets. *Physical review letters* 89, 8 (2002), 084502.
- [30] EGGERS, J., AND VILLERMAUX, E. Physics of liquid jets. *Reports on progress in physics* 71, 3 (2008), 036601.
- [31] EILERS, v. H. Die viskosität von emulsionen hochviskoser stoffe als funktion der konzentration. *Kolloid-Zeitschrift* 97, 3 (1941), 313–321.
- [32] EINSTEIN, A. A new determination of molecular dimensions. *Ann. Phys.* 19 (1906), 289–306.
- [33] EINSTEIN, A. Eine neue bestimmung der molekuldimensionen. *Ann. Phys.* 34 (1911), 591–592.
- [34] ENTOV, V., AND HINCH, E. Effect of a spectrum of relaxation times on the capillary thinning of a filament of elastic liquid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 72, 1 (1997), 31–53.
- [35] FORNARI, W., BRANDT, L., CHAUDHURI, P., LOPEZ, C. U., MITRA, D., AND PICANO, F. Rheology of confined non-brownian suspensions. *Physical review letters* 116, 1 (2016), 018301.
- [36] FREUNDLICH, H., AND RÖDER, H. Dilatancy and its relation to thixotropy. *Transactions of the Faraday Society* 34 (1938), 308–316.
- [37] FURBANK, R. J., AND MORRIS, J. F. An experimental study of particle effects on drop formation. *Physics of Fluids* 16, 5 (2004), 1777–1790.
- [38] FURBANK, R. J., AND MORRIS, J. F. Pendant drop thread dynamics of particle-laden liquids. *International journal of multiphase flow* 33, 4 (2007), 448–468.
- [39] GADALA-MARIA, F., AND ACRIVOS, A. Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres. *Journal of Rheology* 24, 6 (1980), 799–814.
- [40] GOEDDE, E., AND YUEN, M. Experiments on liquid jet instability. *Journal of Fluid Mechanics* 40, 3 (1970), 495–511.
- [41] HARICH, R., DEBLAIS, A., COLIN, A., AND KELLAY, H. Depletion forces induce visco-elasto-capillary thinning of non-brownian suspensions. *EPL (Europhysics Letters)* 114, 5 (2016), 58006.
- [42] HUISMAN, F., FRIEDMAN, S., AND TABOREK, P. Pinch-off dynamics in foams, emulsions and suspensions. *Soft Matter* 8, 25 (2012), 6767–6774.
- [43] INGOLD, C., AND HADLAND, S. A. The ballistics of sordaria. *New Phytologist* 58, 1 (1959), 46–57.
- [44] JAVADI, A., EGGERS, J., BONN, D., HABIBI, M., AND RIBE, N. Delayed capillary breakup of falling viscous jets. *Physical review letters* 110, 14 (2013), 144501.
- [45] KELLER, J. B., AND MIKSIS, M. J. Surface tension driven flows. *SIAM Journal on Applied Mathematics* 43, 2 (1983), 268–277.
- [46] KEREKES, R. J. Rheology of fibre suspensions in papermaking : An overview of recent research. *Nordic Pulp and Paper Research Journal* 21, 5 (2006), 598.
- [47] KIZIOR, T., AND SEYER, F. Axial stress in elongational flow of fiber suspension. *Transactions of the Society of Rheology* 18, 2 (1974), 271–285.

- [48] KORKUT, S., SAVILLE, D. A., AND AKSAY, I. A. Colloidal cluster arrays by electrohydrodynamic printing. *Langmuir* 24, 21 (2008), 12196–12201.
- [49] KRIEGER, I. M., AND DOUGHERTY, T. J. A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Transactions of the Society of Rheology* 3, 1 (1959), 137–152.
- [50] KULKARNI, S. D., METZGER, B., AND MORRIS, J. F. Particle-pressure-induced self-filtration in concentrated suspensions. *Physical Review E* 82, 1 (2010), 010402.
- [51] LAFRANCE, P. Nonlinear breakup of a laminar liquid jet. *The Physics of Fluids* 18, 4 (1975), 428–432.
- [52] LE DIZÈS, S., AND VILLERMAUX, E. Capillary jet breakup by noise amplification. *Journal of Fluid Mechanics* 810 (2017), 281–306.
- [53] LEIGHTON, D., AND ACRIVOS, A. The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions. *Journal of Fluid Mechanics* 181 (1987), 415–439.
- [54] LENARD, P. Ueber die schwingungen fallender tropfen. *Annalen der Physik* 266, 2 (1887), 209–243.
- [55] LINDNER, A., FISCINA, J. E., AND WAGNER, C. Single particles accelerate final stages of capillary break-up. *EPL (Europhysics Letters)* 110, 6 (2015), 64002.
- [56] LUNDELL, F., SÖDERBERG, L. D., AND ALFREDSSON, P. H. Fluid mechanics of papermaking. *Annual Review of Fluid Mechanics* 43 (2011), 195–217.
- [57] MARMOTTANT, P., AND VILLERMAUX, E. On spray formation. *Journal of fluid mechanics* 498 (2004), 73–111.
- [58] MARON, S. H., AND PIERCE, P. E. Application of ree-eyring generalized flow theory to suspensions of spherical particles. *Journal of colloid science* 11, 1 (1956), 80–95.
- [59] MARTIEN, P., POPE, S., SCOTT, P., AND SHAW, R. The chaotic behavior of the leaky faucet. *Physics Letters A* 110, 7-8 (1985), 399–404.
- [60] MATHUES, W., MCILROY, C., HARLEN, O. G., AND CLASEN, C. Capillary breakup of suspensions near pinch-off. *Physics of Fluids* 27, 9 (2015), 093301.
- [61] MCILROY, C., AND HARLEN, O. G. Modelling capillary break-up of particulate suspensions. *Physics of Fluids* 26, 3 (2014), 033101.
- [62] MCKINLEY, G. H., AND SRIDHAR, T. Filament-stretching rheometry of complex fluids. *Annual Review of Fluid Mechanics* 34, 1 (2002), 375–415.
- [63] MEWIS, J., AND METZNER, A. The rheological properties of suspensions of fibres in newtonian fluids subjected to extensional deformations. *Journal of Fluid Mechanics* 62, 3 (1974), 593–600.
- [64] MISKIN, M. Z., AND JAEGER, H. M. Droplet formation and scaling in dense suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109, 12 (2012), 4389–4394.
- [65] MOON, J. Y., LEE, S. J., AHN, K. H., AND LEE, S. J. Filament thinning of silicone oil/poly (methyl methacrylate) suspensions under extensional flow. *Rheologica Acta* 54, 8 (2015), 705–714.

-
- [66] MOON, J. Y., LEE, S. J., AHN, K. H., AND LEE, S. J. Heterogeneity in the final stage of filament breakup of silicone oil/pmma suspensions. *Rheologica Acta* 55, 2 (2016), 91–101.
- [67] NIKITOPOULOS, D. E., AND KELLY, A. J. Formation of a net-negative charged liquid spray. *Physics of Fluids* 12, 9 (2000), S7–S7.
- [68] OLSSON, P., AND TEITEL, S. Critical scaling of shear viscosity at the jamming transition. *Physical review letters* 99, 17 (2007), 178001.
- [69] OSBORNE, B. P., AND STEINBERG, T. A. An experimental investigation into liquid jetting modes and break-up mechanisms conducted in a new reduced gravity facility. *Microgravity-Science and Technology* 18, 3-4 (2006), 57–61.
- [70] PAN, Z., LOUVET, N., HENNEQUIN, Y., KELLAY, H., AND BONN, D. Drop formation in shear-thickening granular suspensions. *Physical Review E* 92, 5 (2015), 052203.
- [71] PAPAGEORGIOU, D. T. On the breakup of viscous liquid threads. *Physics of Fluids* 7, 7 (1995), 1529–1544.
- [72] PERAZZO, A., NUNES, J. K., GUIDO, S., AND STONE, H. A. Flow-induced gelation of microfiber suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 114, 41 (2017), E8557–E8564.
- [73] PETIT, J., RIVIÈRE, D., KELLAY, H., AND DELVILLE, J.-P. Break-up dynamics of fluctuating liquid threads. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109, 45 (2012), 18327–18331.
- [74] PETRIE, C. J. The rheology of fibre suspensions. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 87, 2-3 (1999), 369–402.
- [75] PITTMAN, J., AND BAYRAM, J. Extensional flow of polydisperse fibre suspensions in free-falling liquid jets. *International journal of multiphase flow* 16, 3 (1990), 545–559.
- [76] PLATEAU, J. A. F. *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*, vol. 2. Gauthier-Villars, 1873.
- [77] RAYLEIGH, L. On the capillary phenomena of jets. *Proc. R. Soc. London* 29, 196-199 (1879), 71–97.
- [78] RAYLEIGH, L. Xvi. on the instability of a cylinder of viscous liquid under capillary force. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 34, 207 (1892), 145–154.
- [79] ROCHÉ, M., KELLAY, H., AND STONE, H. A. Heterogeneity and the role of normal stresses during the extensional thinning of non-brownian shear-thickening fluids. *Physical review letters* 107, 13 (2011), 134503.
- [80] SAUTER, U. S., AND BUGGISCH, H. W. Stability of initially slow viscous jets driven by gravity. *Journal of Fluid Mechanics* 533 (2005), 237–257.
- [81] SCHULKES, R. The evolution and bifurcation of a pendant drop. *Journal of Fluid Mechanics* 278 (1994), 83–100.
- [82] SENCHENKO, S., AND BOHR, T. Shape and stability of a viscous thread. *Physical review E* 71, 5 (2005), 056301.

- [83] SETO, R., GIUSTERI, G. G., AND MARTINIELLO, A. Microstructure and thickening of dense suspensions under extensional and shear flows. *Journal of Fluid Mechanics* 825 (2017).
- [84] SEVILLA, A. The effect of viscous relaxation on the spatiotemporal stability of capillary jets. *Journal of Fluid Mechanics* 684 (2011), 204–226.
- [85] SNOOK, B., DAVIDSON, L. M., BUTLER, J. E., POULIQUEN, O., AND GUAZZELLI, E. Normal stress differences in suspensions of rigid fibres. *Journal of Fluid Mechanics* 758 (2014), 486–507.
- [86] TAPIA, F., SHAIKH, S., BUTLER, J. E., POULIQUEN, O., AND GUAZZELLI, É. Rheology of concentrated suspensions of non-colloidal rigid fibres. *Journal of Fluid Mechanics* 827 (2017).
- [87] TAYLOR, G. Gi taylor, proc. r. soc. london, ser. a 313, 453 (1969). *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 313 (1969), 453.
- [88] TOMOTIKA, S. Breaking up of a drop of viscous liquid immersed in another viscous fluid which is extending at a uniform rate. *Proc. R. Soc. Lond. A* 153, 879 (1936), 302–318.
- [89] TROUTON, F. T. On the coefficient of viscous traction and its relation to that of viscosity. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A* 77, 519 (1906), 426–440.
- [90] TRULSSON, M., DEGIULI, E., AND WYART, M. Effect of friction on dense suspension flows of hard particles. *Physical Review E* 95, 1 (2017), 012605.
- [91] VAN DEEN, M. S., BERTRAND, T., VU, N., QUÉRÉ, D., CLÉMENT, E., AND LINDNER, A. Particles accelerate the detachment of viscous liquids. *Rheologica Acta* 52, 5 (2013), 403–412.
- [92] WAN, J., BICK, A., SULLIVAN, M., AND STONE, H. A. Controllable microfluidic production of microbubbles in water-in-oil emulsions and the formation of porous microparticles. *Advanced Materials* 20, 17 (2008), 3314–3318.
- [93] WEINBERGER, C., AND GODDARD, J. D. Extensional flow behavior of polymer solutions and particle suspensions in a spinning motion. *International Journal of Multiphase Flow* 1, 3 (1974), 465–486.
- [94] WYART, M., AND CATES, M. Discontinuous shear thickening without inertia in dense non-brownian suspensions. *Physical review letters* 112, 9 (2014), 098302.
- [95] ZARRAGA, I. E., HILL, D. A., AND LEIGHTON JR, D. T. The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in newtonian fluids. *Journal of Rheology* 44, 2 (2000), 185–220.

Résumé :

Cette thèse aborde la fragmentation d'un milieu lui-même divisé, en l'occurrence, un liquide visqueux contenant des billes ou fibres solides interagissant uniquement mécaniquement. Des expériences sur des ponts et jets capillaires étirés permettent de distinguer un étirement newtonien du jet de sa brisure catastrophique résultant d'effets de taille finie. La phase d'étirement est déterminée par une viscosité élongationnelle, indiscernable de celle de cisaillement pour des billes, et en accord avec des prédictions existantes supposant un alignement des fibres avec le jet. La brisure est caractérisée par le diamètre du jet auquel elle se manifeste. Ces éléments permettent d'expliquer la longueur d'un jet de suspension mesurée sur une large gamme de débits, viscosités du liquide et tailles des billes, couvrant les régimes d'étirement visqueux et inertiel et les régimes où les effets capillaires dominant ou sont écartés par les effets de taille finie. Ils serviront de base à la compréhension des tailles gouttes produites par la fragmentation et documentées ici.