



**HAL**  
open science

# Le Capillarytron : un nouveau rhéomètre pour sonder la rhéologie frictionnelle des suspensions colloïdales.

Bruno Etcheverry

► **To cite this version:**

Bruno Etcheverry. Le Capillarytron : un nouveau rhéomètre pour sonder la rhéologie frictionnelle des suspensions colloïdales.. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Aix Marseille Université, 2022. Français. NNT: . tel-04106592

**HAL Id: tel-04106592**

**<https://hal.science/tel-04106592>**

Submitted on 25 May 2023

**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 DE DOCTORAT

Soutenue à Aix-Marseille Université  
le 12 juillet 2022 par

**Bruno Etcheverry**

## **Le Capillarytron : un nouveau rhéomètre pour sonder la rhéologie frictionnelle des suspensions colloïdales.**

**Discipline**

Sciences pour l'ingénieur

**Spécialité**

Mécanique et Physique des fluides

**École doctorale**

ED 353 Sciences pour l'ingénieur :

Mécanique, Physique, Micro et

Nanoélectronique

**Laboratoire/Partenaires de recherche**

Laboratoire IUSTI, UMR 7343, AMU



**Composition du jury**

Catherine BARENTIN Présidente du Jury

Université Claude Bernard Lyon 1

Pascal BOUSTINGORRY Invité

Entreprise Chryso

Michel CLOITRE Examineur

Université PSL – ESPCI

Yoël FORTERRE Co-Directeur de thèse

Aix-Marseille Université

Elisabeth LEMAIRE Rapportrice

Université Côte d'Azur

Bloen METZGER Directeur de thèse

Aix-Marseille Université

Guillaume OVARLEZ Rapporteur

Université de Bordeaux



# Affidavit

Je soussigné, Bruno Etcheverry, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Bloen Metzger et de Yoël Forterre, dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte d'Aix-Marseille Université relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Marseille, le 8 mai 2022



Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la [Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

# Affidavit

I, undersigned, Bruno Etcheverry, hereby declare that the work presented in this manuscript is my own work, carried out under the scientific direction of Bloen Metzger and Yoël Forterre, in accordance with the principles of honesty, integrity and responsibility inherent to the research mission. The research work and the writing of this manuscript have been carried out in compliance with both the French national charter for Research Integrity and the Aix-Marseille University charter on the fight against plagiarism.

This work has not been submitted previously either in this country or in another country in the same or in a similar version to any other examination body.

Marseille, May, the 8th, 2022



Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la [Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

# Résumé

Un consensus fort a récemment émergé sur le rôle central des contacts frictionnels entre particules sur le comportement rhéologique des suspensions colloïdales. Cependant, aucun outil rhéologique n'existe pour caractériser le comportement frictionnel de ces suspensions. Dans cette thèse, j'ai développé un nouveau rhéomètre : le Capillarytron, qui par le contrôle des contraintes granulaires, donne directement accès à la rhéologie frictionnelle des suspensions colloïdales. L'idée clé de ce nouveau dispositif est d'imposer la contrainte granulaire, non pas en utilisant une grille rigide et mobile comme dans Boyer et al. (2011), mais en utilisant l'interface capillaire air/suspension. Par ce moyen, il est possible d'étendre la rhéologie à pression imposée aux suspensions composées de particules de seulement quelques microns de diamètre.

Après avoir présenté le concept de ce nouveau rhéomètre, je valide son utilisation en étudiant une suspension bien connue de sphères macroscopiques frottantes. J'étudie ensuite une suspension rhéo-épaississante modèle de particules de silice pour laquelle contacts frictionnels et interactions répulsives à courte portée sont simultanément en jeu. Les résultats obtenus valide le scénario de transition frictionnelle récemment mis en avant pour expliquer le rhéo-épaississement des suspensions colloïdales denses. Enfin, nous utilisons le Capillarytron afin d'explorer les signatures frictionnelles de diverses suspensions colloïdales. Ces résultats mettent en évidence la façon dont les propriétés microscopiques de la surface des particules peuvent conduire à divers comportements rhéologiques macroscopiques.

Mots clés : rhéologie, friction, suspensions, rhéo-épaississement

# Abstract

A strong consensus has recently emerged on the central role of frictional contacts between particles on the rheological behavior of colloidal suspensions. However, no rheological tool exists to characterize the frictional behavior of these suspensions. In this thesis, I developed a new rheometer: the Capillarytron, which by controlling the granular stresses, gives direct access to the frictional rheology of colloidal suspensions. The key idea of this new device is to impose the granular stress, not by using a rigid and moving grid as in Boyer et al. (2011), but by using the capillary air/suspension interface. By this means, it is possible to extend imposed pressure rheology to suspensions composed of particles with diameters of only a few microns.

After presenting the concept of this new rheometer, I validate its use by studying a well known suspension of macroscopic frictional particles. I then study a model shear-thickening suspension of silica particles for which frictional contacts and short-range repulsive interactions are simultaneously at play. The results obtained validate the frictional transition scenario recently put forward to explain the shear-thickening of dense colloidal suspensions. Finally, we use the Capillarytron to explore the frictional signatures of various colloidal suspensions. These results highlight how the microscopic properties of the particle surface can lead to various macroscopic rheological behaviors.

Keywords : rheology, friction, suspensions, shear-thickening

---

## Remerciements

---

Je remercie premièrement mes directeurs de thèse, Bloen et Yoël, pour m'avoir accompagné pendant ces trois années. Merci pour votre patience, vos encouragements et tout ce que vous m'avez appris. Merci d'avoir luté avec moi pendant les longs mois où les progrès étaient très lents sans perdre courage. Merci pour toutes les répétitions de présentations, pour vos conseils qui vont m'accompagner durant toute ma carrière.

Merci à Elisabeth Lemaire et à Guillaume Ovarlez de m'avoir fait l'honneur d'être rapporteurs, j'ai beaucoup apprécié vos retours sur mon travail et nos échanges. Merci à Catherine Barentin d'avoir présidé le jury, et d'avoir fait la chasse aux Pascals dans notre expérience, et la chasse aux coquilles dans le manuscrit ! Merci à Michel Cloître d'avoir accepté d'examiner mon manuscrit, et pour nos échanges sur la physico-chimie. Merci à Pascal Boustingorry d'avoir complété le jury, et pour notre collaboration au cours de la thèse.

Merci à tous les collègues de membres de l'IUSTI, notamment Olivier, Henri, Geoffroy, Pascale, Diogo, Jean-Laurent pour la bonne ambiance qui règne au labo. Merci tout particulièrement à Laurence et Joël de m'avoir remonté le moral en fin de thèse !

Merci à tous les collègues doctorants et post-doctorants, mes compagnons d'aventure, pour votre soutien, pour tous les moments de détente que nous avons partagés autour d'un café ou d'un repas. Merci tout particulièrement à Chico, Chong-Wei, Davide, Ilaria, Jeongeun, Hugo, Ignacio, Simon, Victor pour votre amitié.

Merci à l'équipe enseignante de Polytech, particulièrement à Nora et à Stéphane pour votre confiance. Ma mission d'enseignement m'a énormément plu et m'a motivé à poursuivre dans cette voie.

Merci aussi à William pour son travail impressionnant sur l'interface de contrôle, et à Sady et Frédéric pour la réalisation de nombreuses pièces !

Merci à tous mes professeurs, et tout particulièrement à Laurent Hache qui m'a transmis

---

sa passion de la physique.

Merci à mes parents pour avoir pris soin de moi, et pour m'avoir donné les clés pour réussir. Merci pour votre soutien, vos encouragements. Merci de vous être toujours intéressés à ce que je fais. Merci pour votre aide immense lors de l'arrivée de notre enfant.

Merci à ma merveilleuse épouse Siane, pour ton amour et ton soutien. Merci de m'avoir aidé à traverser les périodes de doute et de stress, merci de m'avoir choisi, et d'être qui tu es. Enfin, merci à notre petite Séréna, ta joie qui nous comble de bonheur. Je vous aime.

*Venez à moi, vous tous qui êtes fatigués et chargés, et je vous donnerai du repos.  
Prenez mon joug sur vous et recevez mes instructions, car je suis doux et humble de coeur,  
et vous trouverez du repos pour vos âmes.*

*Matthieu 11 : 28-29*

<b>1</b>	<b>Etat de l'Art</b>	<b>1</b>
1.1	Introduction à la rhéologie . . . . .	3
1.2	Rhéologie des suspensions 'classiques' . . . . .	4
1.2.1	Depuis la limite diluée : approche hydrodynamique . . . . .	4
1.2.2	Depuis le jamming : approche granulaire . . . . .	9
1.2.3	Volume imposé versus Pression imposée . . . . .	12
1.3	Rhéologie des suspensions rhéo-épaississantes . . . . .	14
1.3.1	Phénoménologie . . . . .	14
1.3.2	Applications industrielles . . . . .	15
1.3.3	Une explication du rhéo-épaississement : le modèle de transition frictionnelle . . . . .	16
1.4	Développements récents . . . . .	26
1.4.1	Contrôle de la rhéologie des suspensions . . . . .	26
1.4.2	Vers un modèle pour expliquer la rhéo-fluidification . . . . .	29
1.4.3	Vers une hydrodynamique des suspensions rhéo-épaississantes . . . . .	30
1.5	Motivations et problématique de la thèse . . . . .	31
<b>2</b>	<b>Le Capillarytron : un nouveau rhéomètre à pression imposée</b>	<b>33</b>
2.1	Le Capillarytron : principe de fonctionnement . . . . .	33
2.1.1	Configuration volume imposé . . . . .	34
2.1.2	Mesure type et protocole à volume imposé . . . . .	36
2.1.3	Configuration à pression imposée . . . . .	37
2.1.4	Mesures types et protocoles à pression imposée . . . . .	39
2.2	Le dispositif expérimental plus en détails . . . . .	43
2.2.1	Plateau inférieur poreux . . . . .	43
2.2.2	Alignement et parallélisme . . . . .	43
2.2.3	Capteur de pression . . . . .	44
2.2.4	Acquisition des signaux . . . . .	46
2.2.5	Table anti-vibration . . . . .	46

2.2.6	Boite anti-évaporation . . . . .	47
2.2.7	Visualisation optique des particules . . . . .	47
2.3	Que mesure-t-on vraiment ? . . . . .	50
2.3.1	Lois rhéologiques moyennes . . . . .	51
2.3.2	Différences de contraintes normales . . . . .	52
2.3.3	Cas des suspensions rhéo-épaississantes . . . . .	54
<b>3</b>	<b>Le Capillarytron : preuve de concept</b>	<b>57</b>
3.1	Recherche d'une suspension 'classique' Newtonienne . . . . .	57
3.2	Rhéologie à <i>Volume imposé</i> . . . . .	60
3.3	Rhéologie à <i>Pression imposée</i> . . . . .	63
3.4	Comparaison <i>Volume imposé</i> versus <i>Pression imposée</i> . . . . .	66
3.5	Différences de contraintes normales et anisotropie des contraintes . . . . .	69
3.6	Difficultés expérimentales rencontrées . . . . .	71
3.7	Conclusion . . . . .	73
<b>4</b>	<b>Rhéologie frictionnelle de suspensions rhéo-épaississantes</b>	<b>76</b>
4.1	Le modèle de transition frictionnel à pression imposée . . . . .	77
4.2	Résultats expérimentaux . . . . .	79
4.2.1	Premières tentatives avec la Maïzena . . . . .	79
4.2.2	Une suspension rhéo-épaississante modèle : micro-billes de silice . . . . .	82
4.2.3	Un 'gap' expérimental . . . . .	88
4.3	Ouverture : vers des suspensions colloïdales complexes . . . . .	93
4.3.1	Amidon de pomme de terre + eau . . . . .	93
4.3.2	Silice 4.7 $\mu\text{m}$ + eau . . . . .	94
4.4	Conclusion . . . . .	96
<b>5</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>97</b>
5.1	Conclusions . . . . .	97
5.2	Perspectives . . . . .	99
5.2.1	Signature frictionnelle de suspensions complexes : Raspberry, Click-chemistry, $\text{CaCO}_3$ , PMMA gonflé . . . . .	99
5.2.2	Mesure de $\phi$ . . . . .	99
5.2.3	Capillarytron annulaire . . . . .	101
	<b>Appendix : Articles en préparation</b>	<b>103</b>

# CHAPITRE 1

---

## Etat de l'Art

---

Les suspensions sont constituées de particules immergées dans un fluide suspendant. Ces systèmes abondent autour de nous : béton, boue, sang ... (cf. figure 1.1). La compréhension de leur rhéologie intéresse autant les industriels, par exemple dans le génie civil pour l'optimisation des propriétés d'écoulement du béton frais [1], que les géophysiciens pour l'étude et la modélisation des coulées de laves torrentielles [2], mais aussi la médecine car les propriétés d'écoulement du sang peuvent renseigner sur certaines pathologies [3].

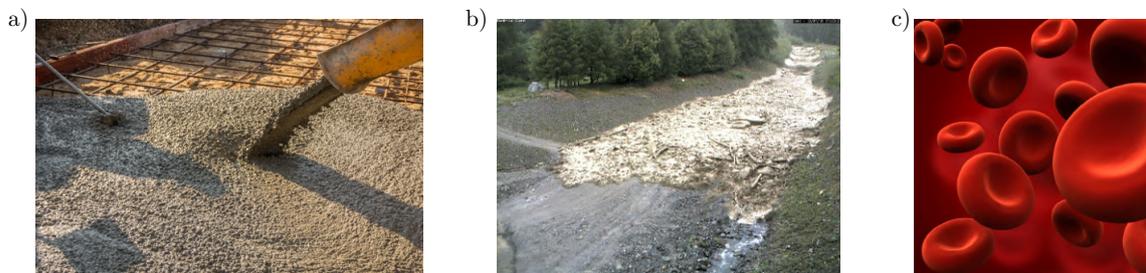


FIGURE 1.1 – Exemples de suspensions de particules : a) Ciment frais, b) Lave torrentielle, c) Sang.

En fonction de la nature des particules (composition, taille, densité, forme) et du fluide suspendant (densité, composition chimique), la dynamique des particules peut être régie par des forces très différentes : traînée visqueuse, forces électrostatiques, forces de Van der Waals, agitation thermique etc... Cette diversité de forces peut engendrer des comportements rhéologiques macroscopiques très variés.



FIGURE 1.2 – Personnes courant sur la surface d’une piscine remplie d’une suspension d’amidon de maïs dans de l’eau.

Dans cette thèse, nous étudierons en particulier les suspension de particules colloïdales<sup>1</sup>. Une caractéristique fascinante de ces suspensions est qu’elles peuvent être rhéo-épaississantes. Cette propriété traduit le fait que la viscosité de la suspension peut soudainement augmenter, parfois de plusieurs ordres de grandeur, lorsque la contrainte appliquée à la suspension dépasse un valeur critique. Un exemple emblématique de suspension rhéo-épaississante est le mélange de grains d’amidon et d’eau, qui au repos est liquide comme du lait, mais peut se solidifier totalement s’il est soumis à un impact, cf. figure 1.2 où l’on voit des personnes courir à la surface d’une piscine remplie d’une suspension d’amidon de maïs dans de l’eau. Cette propriété, dont l’expérience défie l’entendement, est une source intarissable d’émerveillement et d’amusement pour petits et grands. Au-delà de cet aspect ludique et spectaculaire, les suspensions rhéo-épaississantes sont aussi très présentes dans l’industrie, par exemple dans l’industrie du vinyle, du chocolat [4], mais aussi du béton dit ‘moderne’ [5]. Le comportement rhéo-épaississant de la suspension est alors soit problématique, car à l’origine d’instabilité, du bourrage des pompes, de la casse de mélangeur, ou peut être tourné à son avantage, par exemple comme on le verra, pour obtenir des bétons auto-plaçants, des dos d’âne intelligents ou des protections sportives. Afin de progressivement introduire les concepts nécessaires à la compréhension des suspensions rhéo-épaississantes, nous allons d’abord présenter les différents comportements rhéologiques observés dans les fluides. Nous décrirons ensuite le comportement des suspensions ‘classiques’ (i.e. non rhéo-épaississantes). Cela nous permettra de présenter les différentes approches *Volume imposé* et *Pression imposée* qui permettent de caractériser leurs comportements rhéologiques. Nous introduirons ensuite le modèle de transition frictionnelle qui a été proposé récemment pour comprendre le rhéo-épaississement observé dans certaines suspensions colloïdales denses. Ce chapitre me permettra de développer une problématique et un ensemble de questions qui constitueront les motivations de mon travail de thèse.

1. Nous parlerons de suspensions colloïdales pour désigner des suspensions pour lesquelles les forces colloïdales (e.g. interaction de van de Waals, répulsion électrostatique entre surface chargées, répulsion stérique entre polymères, force de solvation, agitation thermique) jouent un rôle dans la rhéologie. Une suspension colloïdale peut-être non-Brownienne, si son diamètre est suffisant pour que l’agitation thermique soit négligeable devant les autres interactions.

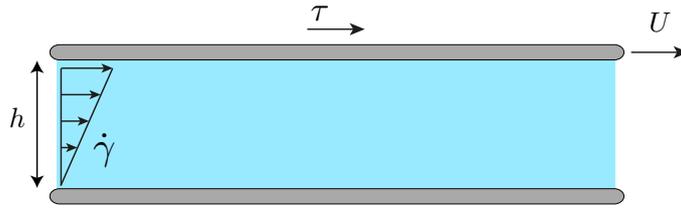


FIGURE 1.3 – Fluide Newtonien cisailé entre deux plaques.

## 1.1 Introduction à la rhéologie

Lorsque l'on place un fluide entre deux plaques distantes de  $h$ , et que l'on impose une vitesse  $U$  à l'une des plaques comme illustré sur la figure 1.3, la relation constitutive qui lie la contrainte de cisaillement  $\tau$  au taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = U/h$  définit la viscosité  $\eta_f$  du fluide :

$$\tau = \eta_f \dot{\gamma}. \quad (1.1)$$

Plus la viscosité est élevée, plus la résistance du fluide à l'écoulement est importante. Par exemple, le miel a une viscosité de  $\eta_f \simeq 5$  Pa.s, alors que l'eau a une viscosité de  $\eta_f \simeq 10^{-3}$  Pa.s. Pour la plupart des liquides ou des gaz simples, la viscosité ne dépend pas du taux de cisaillement, ces fluides sont appelés Newtoniens. Néanmoins, de nombreux fluides ont un comportement plus complexe, tels que les polymères [6], les mousses [7] ou les émulsions [8], cf. figure 1.4. Ces comportements non-Newtoniens sont dus à l'existence d'une microstructure à une échelle mésoscopique, comprise entre celle des molécules du fluide et celle de l'écoulement. Certains fluides, comme par exemple le sang ont une viscosité qui diminue avec le taux de cisaillement, on les appelle *fluides rhéo-fluidifiants*, tandis que d'autres, par exemple un mélange d'amidon de maïs et d'eau voient leur viscosité augmenter avec le taux de cisaillement, on les appelle *fluides rhéo-épaississants*. D'autres fluides, appelés *fluides à seuil*, comme le dentifrice ou les milieux granulaires sous gravité, ne peuvent s'écouler que lorsque la contrainte imposée dépasse une valeur critique.

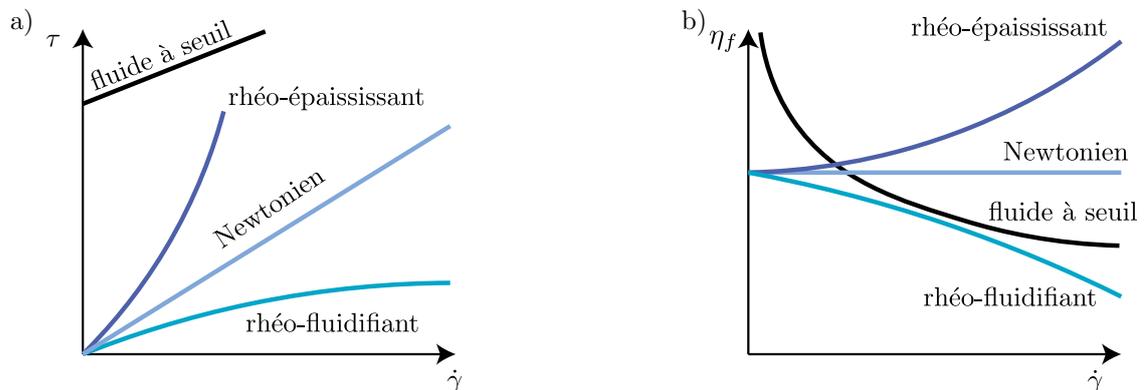


FIGURE 1.4 – Rhéologie des fluides : une variété de comportements possibles. a) Contrainte de cisaillement  $\tau$  en fonction de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . b) Viscosité  $\eta_f$  en fonction de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ .

## 1.2 Rhéologie des suspensions ‘classiques’

Les suspensions de particules ont des comportements très divers, et leur étude peut faire appel à des concepts physiques très variés. Par exemple, pour les suspensions dites Browniennes, le diamètre des particules  $d$  est suffisamment petit ( $d \leq 1 \mu\text{m}$ ) pour que l'agitation thermique affecte leur rhéologie [9, 10]. Pour les suspensions de particules déformables, comme par exemple le sang, les contraintes exercées par le plasma peuvent déformer les globules rouges, et ainsi modifier la rhéologie [11]. Un domaine actuellement très dynamique concerne les suspensions actives, comme par exemple des suspensions de bactéries. Dans ces systèmes, les particules convertissent l'énergie chimique du milieu en travail mécanique, et peuvent ainsi se mouvoir et résister à la traînée visqueuse, ce qui affecte aussi dramatiquement la rhéologie du milieu [12].

Devant cette grande complexité, nous allons dans un premier temps nous intéresser à une suspension modèle, la plus simple possible. Ses caractéristiques sont les suivantes :

- Les particules sont sphériques et rigides.
- Leur diamètre  $d$  est suffisamment grand pour que l'effet de l'agitation thermique ou de toute force d'origine colloïdale (interaction de Van der Waals, liaisons hydrogène, adsorption d'ions en surface...) soit négligeable.
- Les particules sont immergées dans un fluide Newtonien de viscosité  $\eta_f$  suffisamment élevée afin que l'on puisse négliger tout effet inertiel.
- Leur densité est identique à celle du fluide suspendant afin de s'affranchir des effets de sédimentation.

Nous appellerons une telle suspension : suspension "classique", par opposition aux suspensions rhéo-épaississantes que nous aborderons plus tard. Nous allons voir que malgré sa simplicité, ces suspensions classiques présentent néanmoins une grande richesse de comportements et que la description de leur comportement rhéologique a longtemps résisté aux travaux des chercheurs.

### 1.2.1 Depuis la limite diluée : approche hydrodynamique

Historiquement, la rhéologie des suspensions a été abordée à partir de la limite diluée  $\phi \ll 1$ , où  $\phi$  est la fraction volumique en particules. Dans sa thèse de doctorat en 1905, Einstein [13] prédit le premier que la viscosité  $\eta$  d'une suspension, adimensionnée par la viscosité  $\eta_f$  du fluide, est donnée par  $\eta/\eta_f = 1 + 2.5\phi$ . Ce résultat est obtenu en considérant la dissipation visqueuse induite par chacune des particules au sein du fluide. On peut retrouver qualitativement ce résultat [14] en considérant l'influence des particules sur le transport de la quantité de mouvement dans le fluide. Considérons, comme illustré sur la figure 1.5, une droite traversant une suspension de particules iso-denses. Le transport de quantité de mouvement le long de cette droite est diffusif dans le fluide sur la portion  $\overline{DE}$ , mais il est instantané sur la portion  $\overline{EF}$  occupée par une particule rigide : les particules agissent comme un "court-circuit" pour le transport de la quantité de mouvement. On obtient donc que le temps de diffusion  $t_{DF}$  sur la distance  $\overline{DF}$  est égal au temps de diffusion  $t_{DE}$  sur la distance  $\overline{DE}$ , soit  $t_{DF} = \overline{DF}^2 / (\eta/\rho) = \overline{DE}^2 / (\eta_f/\rho)$ , où  $\eta$  et  $\eta_f$  sont respectivement la viscosité de la suspension

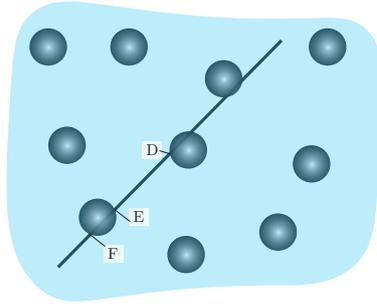


FIGURE 1.5 – Les particules, "court-circuits" de la quantité de mouvement, induisent au augmentation de la viscosité de la suspension. Adapté de [14].

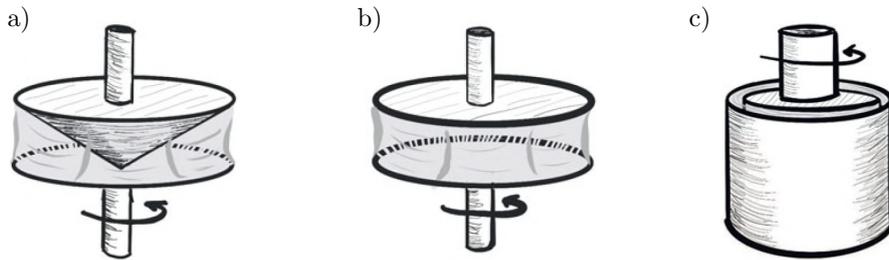


FIGURE 1.6 – Dispositifs rhéométriques usuels : Configurations a) cône/plan b) plan/plan c) couette cylindrique. La mesure de la vitesse de rotation et de couple appliqué permet d'accéder à la viscosité de la suspension. Adaptée de [16].

et celle du fluide suspendant et  $\rho$  est la densité du milieu. Comme  $\overline{DF}/\overline{DE} = 1 - \phi$ , viscosité de la suspension s'écrit  $\eta \approx \eta_f(1 + 2\phi)$ , résultat proche du calcul exact précédent.

Pour déterminer la viscosité de suspensions plus concentrées, Batchelor considère en 1977 l'effet des interactions hydrodynamiques de paires ce qui permet d'étendre la relation précédente au second ordre :  $\eta(\phi)/\eta_f = 1 + 2.5\phi + 7.62\phi^2$  [15]. Cette relation permet de prédire la viscosité pour des fractions volumiques jusqu'à une dizaine de pourcent. Pour des concentration plus élevées, les développements analytiques deviennent extrêmement complexes car il faut considérer des interactions à plus de deux particules. Ainsi, une approche phénoménologique a été adoptée, avec l'établissement de lois empiriques. Pour mesurer la viscosité d'une suspension, on utilise les techniques de rhéologie usuelles de type cône/plan, plan/plan ou couette cylindrique, telles qu'illustrées sur la figure 1.6.

Pour une fraction volumique  $\phi$  donnée, la mesure de la contrainte  $\tau$  nécessaire pour imposer un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  donne accès à la viscosité de cisaillement de la suspension selon la relation constitutive

$$\tau(\phi, \dot{\gamma}) = \eta_f \eta_s(\phi) \dot{\gamma}, \quad (1.2)$$

où l'on introduit la viscosité de cisaillement adimensionnée  $\eta_s(\phi)$ . Dans cette configuration, dite à *volume imposé*, la fraction volumique  $\phi$  en particules est imposée et reste constante au cours du temps. Cette relation se déduit en fait directement de l'analyse dimensionnelle. En effet, compte-tenu des grandeurs physiques mises en jeu dans une suspension modèle (taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , viscosité du fluide  $\eta_f$ , fraction volumique  $\phi$ ), le seul nombre sans dimension

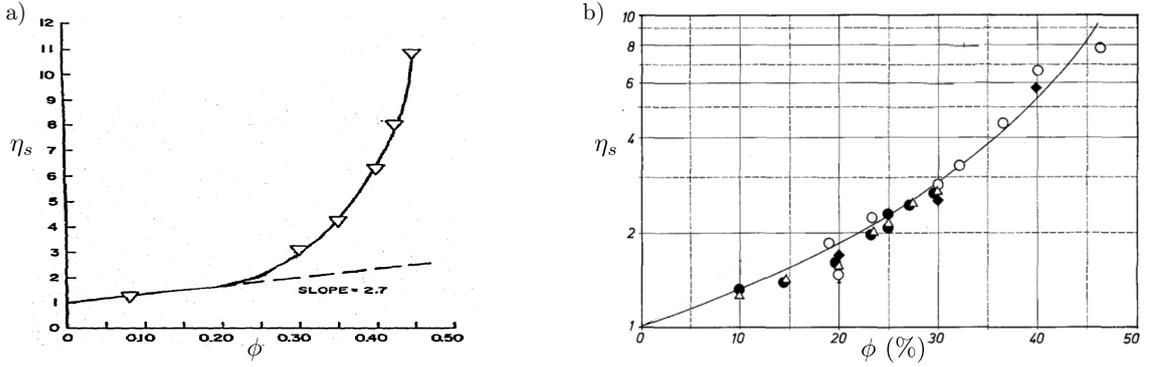


FIGURE 1.7 – Viscosité de cisaillement adimensionné  $\eta_s$  en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$ , et lois empiriques proposées : a) Krieger et Dougherty *et al.* [17]  $\eta_s = (1 - \phi/\phi_J)^{-A\phi_J}$ , où  $A = 2.7$  et  $\phi_J = 0.57$  et b) Ferrini *et al.* [18]  $\eta_s = [1 + (0.5A/(1/\phi - 1/\phi_J))]^2$ , où  $A=4.36$  et  $\phi_J=0.54$ .

que l'on puisse construire est la fraction volumique  $\phi$  et la seule échelle de contrainte est  $\eta_f \dot{\gamma}$ , ce qui impose une relation linéaire entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement (rhéologie Newtonienne).

La figure 1.7 illustre des rhéogrammes typiques de suspensions obtenus pour des fractions volumiques allant jusqu'à 50%. On remarque que dès lors que  $\phi > 10\%$ , la viscosité augmente de manière plus importante que les prédictions d'Einstein et de Batchelor. En utilisant cette approche phénoménologique, un grand nombre de lois empiriques ont été proposées, par exemple celle de Krieger et Dougherty  $\eta_s = (1 - \phi/\phi_J)^{-A\phi_J}$  [19], ou celle de Ferrini *et al.*  $\eta_s = [1 + (0.5A/(1/\phi - 1/\phi_J))]^2$  [18], pour lesquelles la viscosité diverge lorsque  $\phi$  s'approche d'une valeur limite  $\phi_J$ . Les données les plus récentes [16, 20–22] semblent converger vers une expression plus simple de la viscosité qui prend la forme suivante dans le régime très concentré

$$\eta_s \sim (\phi_J - \phi)^{-n}, \quad (1.3)$$

avec un coefficient de divergence de viscosité  $n \approx 2$ . On voit ici apparaître  $\phi_J$ , la fraction volumique de jamming, qui est un paramètre crucial pour comprendre la rhéologie des suspensions. Ce paramètre dépend du coefficient de friction  $\mu_p$  entre les particules [23, 24], de la forme des particules [25, 26] et de leur distribution de taille [27]. Par exemple, une suspension de sphères mono-disperses non frottantes, c'est-à-dire pour lesquelles le coefficient de friction  $\mu_p$  entre les particules est nul, a pour fraction volumique de jamming  $\phi_J \simeq 0.64$  [28], alors que pour des sphères mono-disperses frottantes  $\phi_J \simeq 0.55 - 0.60$  est plus faible [16, 20, 21]. Remarquons également que l'exposant  $\alpha \approx 2$  de divergence de la viscosité semble être valable pour des particules frottantes. Pour des particules non-frottantes, des théories proposent un exposant plus grand :  $n = 2.85$  [29].

Avec le développement de l'informatique, les années 80 voient l'apparition de simulations numériques. Plusieurs méthodes ont été proposées, la plus influente étant probablement la Dynamique Stokésienne. Cette méthode, qui introduit l'effet de l'agitation Brownienne, se

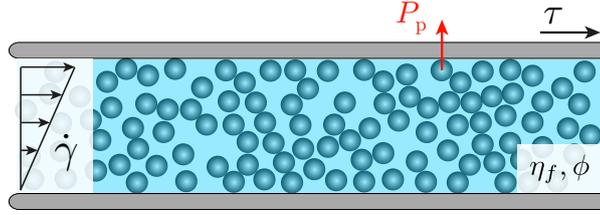


FIGURE 1.8 – Schéma illustrant l'émergence de contraintes normales dans une suspension de particules cisailée.

base aussi sur l'idée que le comportement des suspensions est dominé par l'effet des interactions hydrodynamiques. Elle propose ainsi une description détaillée de ces interactions qui incluent les interactions hydrodynamiques longues portées et les forces de lubrifications. Les interactions hydrodynamiques qui sont calculées au second ordre, tiennent compte des interactions de paires et sont formulées de manière à décrire les interactions multi-corps [30, 31]. Ces simulations retrouvent les bonnes tendances pour l'évolution de la viscosité avec la fraction volumique et elles ont aussi permis d'accéder à des informations nouvelles, par exemple concernant la microstructure, les fonctions de distribution spatiale des particules [30] et leur comportement diffusif induit par le cisaillement [32].

Jusqu'ici, nous avons décrit la suspension de particules tel un fluide effectif ayant une viscosité de cisaillement dépendant de la fraction volumique. Une autre caractéristique importante qui distingue les suspensions des fluides homogènes est l'apparition sous cisaillement de contraintes normales. Considérons une suspension suffisamment dense cisailée entre deux plaques comme illustré sur la figure 1.8. Le cisaillement induit des “collisions”<sup>2</sup> successives entre les particules qui vont générer l'apparition de contraintes normales à l'écoulement : la phase granulaire développe une pression que nous appellerons la *pression granulaire*  $P_p$ . Contrairement à la pression dans un fluide homogène, cette pression dépend du taux de cisaillement car les forces inter-grains sont plus fortes lorsque le taux de cisaillement est plus élevé. Nous voyons ainsi que pour décrire complètement la rhéologie d'une suspension, une nouvelle loi reliant la pression granulaire  $P_p$  et le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est nécessaire. Cette relation constitutive s'écrit également par analyse dimensionnelle

$$P_p = \eta_f \eta_n(\phi) \dot{\gamma}, \quad (1.4)$$

qui définit la viscosité normale adimensionnée  $\eta_n$ . En toute rigueur, la pression granulaire est anisotrope [21], et il est nécessaire d'adopter une écriture tensorielle. En faisant l'hypothèse que les trois composantes de la pression granulaire ont la même dépendance en la fraction

2. En l'absence d'inertie, il s'agit des contacts solides entre particules.

volumique, on peut écrire :

$$\underline{\underline{P_p}} = \eta_f \eta_n(\phi) \dot{\gamma} \begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3 \end{pmatrix}, \quad (1.5)$$

où  $\lambda_1$  et  $\lambda_3$  caractérisent l'anisotropie de la pression granulaire. Dans la suite de ce manuscrit, nous appellerons  $P_p$  la composante dans la direction du gradient de vitesse, soit  $P_p = \underline{\underline{P_p}}^2 = \eta_f \eta_n(\phi) \dot{\gamma}$ . Nous utiliserons la convention usuelle en rhéologie où la base d'expression du tenseur des contraintes est  $(\vec{u}_1, \vec{u}_2, \vec{u}_3)$ , avec  $\vec{u}_1$  la direction de la vitesse,  $\vec{u}_2$  celle du gradient de vitesse, et  $\vec{u}_3$  celle du rotationnel de la vitesse.

Une remarque importante est que les rhéomètres présentés en figure 1.6 ne permettent pas en général de mesurer la pression granulaire, et donc d'accéder à la seconde relation constitutive Equ. 1.4. Pour accéder à cette loi, Dbouk *et al.* [21] ont proposé une méthode originale, basée sur l'utilisation de capteurs de pression, voir figure 1.9a.

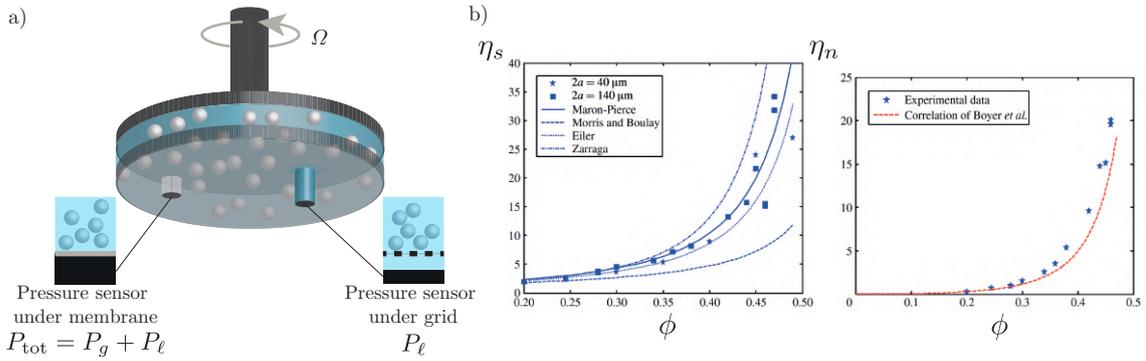


FIGURE 1.9 – a) Rhéomètre plan/plan à volume imposé donnant accès à la pression granulaire  $P_p$  grâce à des capteurs de pression. b) Viscosités de cisaillement  $\eta_s$  et normale  $\eta_n$  en fonction de la fraction volumique  $\phi$  obtenues avec ce dispositif. Adapté de [21].

Partant d'une configuration plan/plan classique en rhéologie, des capteurs sont ajoutés afin de mesurer la pression granulaire. Un premier capteur de pression, placé sous une membrane au contact de la suspension, comme représenté en figure 1.9a, permet de mesurer la pression totale due aux particules et au liquide :  $P_{tot} = P_p + P_\ell$ . Le second capteur de pression est lui placé sous une grille, imperméable aux particules mais perméable au fluide. Celui-ci permet de mesurer la pression du liquide  $P_\ell$  seule. Par différence, on obtient alors la pression granulaire  $P_p$ , ce qui donne accès à la viscosité normale  $\eta_n$ . La figure 1.9b indique que la viscosité normale suit la même divergence ( $n \approx 2$ ) que la viscosité de cisaillement.

Nous avons vu dans cette section que l'approche hydrodynamique, qui appréhende les suspensions depuis la limite diluée, ainsi que la rhéologie à volume imposé, ont permis d'établir les lois constitutives décrivant l'évolution de la viscosité des suspensions. Cette approche à volume imposé présente néanmoins certaines limites. Premièrement, les configurations rhéo-

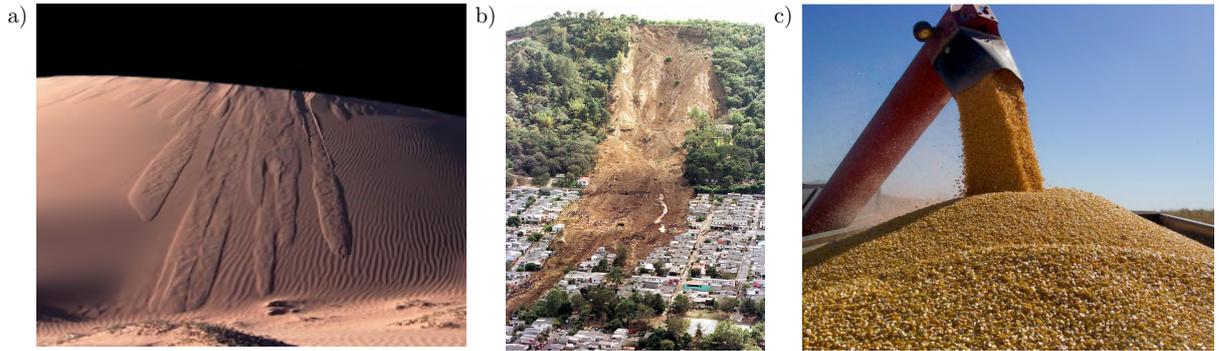


FIGURE 1.10 – Divers écoulements granulaires où la pression est imposée par la gravité : a) Avalanches de sable dans le désert marocain ©MSC. b) Glissement de terrain meurtrier au Salvador. Par U.S Geological Survey. c) Stockage de grains de maïs.

métriques usuelles présentés ci-dessus ne donnent en général pas accès à la pression granulaire  $P_p$ , et donc à la seconde loi constitutive caractérisant les suspensions de particules. Deuxièmement, on a vu plus haut que les mesures rhéologiques à volume imposé sont généralement limités à des fractions volumiques ne dépassant pas  $\phi = 50\%$ <sup>3</sup>, alors que les suspensions très denses, ayant des fractions volumiques supérieures à cette limite, sont très souvent rencontrées dans l'industrie (e.g. bétons) et dans la nature (e.g. boues). Cette limitation vient du fait que les suspensions très denses sont extrêmement visqueuses : il est donc très difficile de les préparer et de les homogénéiser sans y introduire de bulles d'air. De plus, étant proche du jamming, les grandeurs rhéologiques  $\tau$  et  $P_p$  divergent et sont donc difficilement mesurables.

Nous allons dans la suite présenter une approche rhéologique différente qui permet de surmonter ces limitations. Cette approche considère les suspensions depuis l'autre limite : celle du jamming et utilisent les outils développés pour les milieux granulaires ; elle permet ainsi de caractériser les milieux très denses.

### 1.2.2 Depuis le jamming : approche granulaire

Jusqu'à présent, nous avons considéré une suspension pour laquelle la fraction volumique est fixée (configuration à volume imposé). La fraction volumique  $\phi$  est alors le paramètre de contrôle pertinent. Dans ce cas, les contraintes s'adaptent au taux de cisaillement imposé. Il faut cependant remarquer que dans la plupart des écoulements granulaires rencontrés dans la nature (glissement de terrain, lave torrentielle, avalanche), ou dans l'industrie (vidange d'un silo de grain, transport de produits), ce n'est pas la fraction volumique en particules qui est contrôlée, mais la pression granulaire, dans la plupart des cas par la gravité. Ainsi, pour se rapprocher de ces conditions, des méthodes expérimentales où la pression granulaire est imposée ont été développées, notamment à l'IUSTI. Ces méthodes, d'abord développées pour étudier les milieux granulaires secs, ont ensuite été étendues aux suspensions granulaires denses en utilisant la configuration présentée figure 1.11.

3. Sauf dans le cas de suspensions non-frottantes ou présentant des forces de répulsions à courte portée, pour lesquelles la fraction volumique de jamming est plus élevée et des concentrations plus grandes peuvent être atteintes.

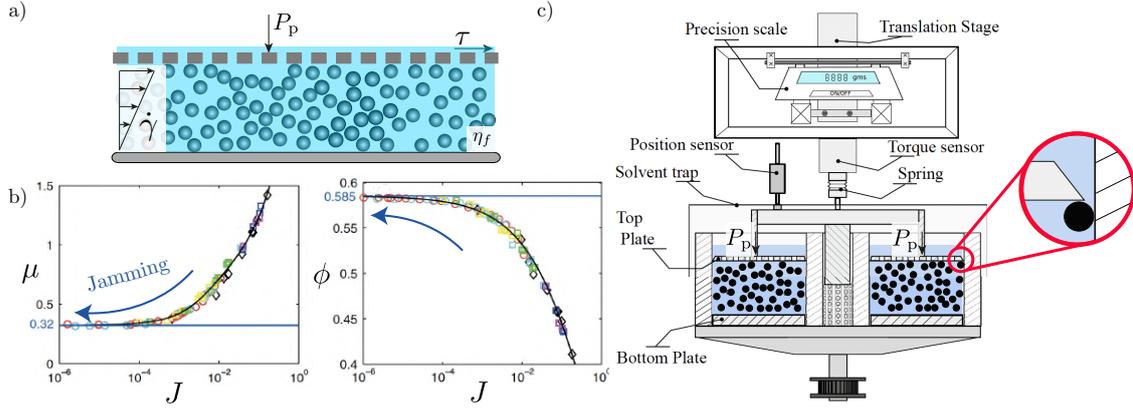


FIGURE 1.11 – Rhéométrie à *pression imposée* développée à l'IUSTI, d'abord par Boyer *et al.* [20] puis modifié par Dagois-Bohy *et al.* [34] et Tapia *et al.* [22]. a) La pression granulaire  $P_p$  est imposée grâce à une grille mobile, perméable au fluide mais imperméable aux particules. b) Rhéologie frictionnelle : coefficient de friction de la suspension  $\mu = \tau/P_p$  et fraction volumique  $\phi$  versus nombre visqueux  $J = \eta_f \dot{\gamma}/P_p$  [20]. c) Rhéomètre à pression imposée adapté de [22]. Inset : mise en évidence de l'espace existant entre la grille mobile et la paroi, limitant le dispositif à la caractérisation de suspension de particules dont le diamètre  $d > 300\mu\text{m}$ .

Dans cette configuration annulaire, la pression granulaire  $P_p$  est imposée via une grille libre de se déplacer verticalement, imperméable aux grains mais perméable au fluide suspendant. Ainsi, contrairement à la configuration précédente, la fraction volumique  $\phi$  est ici libre de s'ajuster en fonction de la pression  $P_p$  et du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  imposés. Dans cette configuration dite à *pression imposée*, les relations constitutives décrivant la rhéologie de la suspension s'écrivent

$$\tau = \mu(J)P_p, \quad (1.6)$$

et

$$\phi = \phi(J), \quad (1.7)$$

où  $J = \eta_f \dot{\gamma}/P_p$ , appelé nombre visqueux, est le seul nombre sans dimension que l'on peut construire avec les paramètres de contrôle dans cette configuration :  $\eta_f$ ,  $P_p$  et  $\dot{\gamma}$  [16]. Le nombre visqueux  $J$  a été construit en s'inspirant du nombre inertiel  $I = \dot{\gamma}d/\sqrt{P_p/\rho_p}$  caractérisant les écoulements de milieux granulaires secs, où  $\rho_p$  est la densité des particules [33]. Ce nombre sans dimension correspond au rapport de deux temps caractéristiques  $I = t_{\text{micro}}/t_{\text{macro}}$ , où  $t_{\text{macro}} = 1/\dot{\gamma}$  est le temps lié au cisaillement moyen, et  $t_{\text{micro}} = d/\sqrt{P_p/\rho}$  correspond au temps de réarrangement des grains sous l'effet de la pression granulaire. Lorsque les grains sont immergés dans un fluide visqueux, de manière similaire, on définit  $J = t_{\text{micro}}/t_{\text{macro}}$  avec un temps macroscopique toujours défini comme  $t_{\text{macro}} = 1/\dot{\gamma}$ , mais cette fois le temps de réarrangement microscopique est donné par  $t_{\text{micro}} = \eta_f/P_p$ . On obtient bien  $J = \eta_f \dot{\gamma}/P_p$ .

À ce stade, il est important de remarquer que l'équation 1.6 prend naturellement la forme d'une loi de friction de type Coulombienne. En effet, le coefficient de friction macroscopique de la suspension  $\mu = \tau/P_p$  est défini comme le rapport entre la contrainte de cisaillement tangentielle  $\tau$  et la contrainte normale  $P_p$ . Les premières lois rhéologiques frictionnelles ont

été obtenues en 2011 [20] grâce au dispositif expérimental présenté sur la figure 1.11b Boyer *et al.* proposent les deux relations constitutives suivantes

$$\begin{aligned}\mu(J) &= \underbrace{\mu_c + \frac{(\mu_0 - \mu_c)}{(1 + J_0/J)}}_{\text{contacts}} + \underbrace{J + 2.5\phi_J J^{1/2}}_{\text{hydrodynamique}}, \\ \phi(J) &= \frac{\phi_J}{1 + J^{1/2}},\end{aligned}\tag{1.8}$$

où  $\mu_c$  correspond au coefficient de friction quasi-statique de la suspension (lorsque  $J \rightarrow 0$ ),  $\mu_0$  et  $J_0$  sont des paramètres de fit. On notera que la valeur du coefficient  $\mu_c$  dépend du coefficient de friction inter-particules  $\mu_p$  [28], ainsi que de la forme des particules [35]. On peut remarquer, qu'à pression imposée, la suspension granulaire ne s'écoule qu'au delà d'une contrainte seuil donnée par  $\mu_c P_p$ . La première relation  $\mu(J)$  est ici construite comme la somme de deux contributions, celles des contacts et celle de l'hydrodynamique. La contribution des contacts est identique à la relation  $\mu(I)$  proposé pour décrire les milieux granulaires secs [36, 37]. La contribution hydrodynamique est choisie de manière à retrouver la viscosité d'Einstein à grand  $J$  (i.e. à faible  $\phi$ ) [13]. Comme par définition  $J \equiv 1/\eta_n(\phi)$  (voir equation 1.12), on voit que la seconde relation  $\phi(J)$  satisfait la divergence de la viscosité normale  $\eta_n \sim (\phi_J - \phi)^{-2}$  lorsque  $\phi \rightarrow \phi_J$ .

Suite à la détermination de ces lois empiriques, des travaux théoriques récent [23, 29, 38] ont proposé des formes simplifiés (valables à faible  $J$ ) en lois d'échelle du type  $\mu - \mu_c \propto J^{\alpha_\mu}$ , et  $\phi - \phi_J \propto J^{\alpha_\phi=1/n}$  où  $\mu_c$ ,  $\alpha_\mu \approx 0.5$  et  $\alpha_\phi \approx 0.5$  pour des particules frottantes. Ces auteurs proposent une interprétation géométrique de cette divergence qui fait appel à un nouveau concept : *l'effet de levier*, et à un bilan énergétique que l'on expose succinctement dans l'encadré 'Effet de Levier' 1.2.2. Un consensus semble ainsi émerger aujourd'hui sur des lois constitutives plus simples que celle de Boyer et al, de la forme [22, 29, 39, 40]

$$\begin{aligned}\mu(J) &= \mu_c + AJ^{\alpha_\mu} \\ \phi(J) &= \frac{\phi_J}{1 + J^{\alpha_\phi}}.\end{aligned}\tag{1.9}$$

Dans le cas de particules frottantes, on a  $\alpha_\mu \approx \alpha_\phi \approx 1/2$ , avec  $\mu_c \approx 0.3$ ,  $A \approx 5.45$  et  $\phi_J \approx 0.585$  pour les mesures expérimentales les plus récentes [22]. Dans le cas de particules non-frottantes ( $\phi_J = 0.64$ ), on a expérimentalement  $\alpha_\mu \approx \alpha_\phi \approx 0.35$ , avec  $\mu_c \approx 0.1$ ,  $A \approx 2$  [40].

### Effet de Levier

La divergence de la viscosité d'une suspension proche du jamming, peut être interprétée à la lumière du comportement du taux de cisaillement local,  $\dot{\gamma}_{loc}$ , que subit le liquide interstitiel entre les particules. Premièrement, l'analyse dimensionnelle implique que ce taux de cisaillement local est proportionnel au taux de cisaillement macroscopique imposé, tel que

$$\dot{\gamma}_{loc} = \mathcal{L}(\phi)\dot{\gamma}, \quad (1.10)$$

où on appelle  $\mathcal{L}(\phi)$  la fonction 'levier'. Deuxièmement, on peut exprimer la puissance volumique dissipée par la suspension soit à l'échelle macroscopique, où  $\mathcal{P} = \tau\dot{\gamma} = \eta_f\eta_s(\phi)\dot{\gamma}^2$ , soit à l'échelle microscopique  $\mathcal{P} = (1 - \phi)\eta_f\dot{\gamma}_{loc}^2$ , en considérant que l'essentiel de la dissipation a lieu dans le fluide interstitiel et non au niveau des contacts (ce qui est rigoureusement vrai dans le cas de particules *non frottantes*).

En égalisant ces deux expressions, on obtient que

$$\eta_s(\phi) = \frac{(1 - \phi)\dot{\gamma}_{loc}^2}{\dot{\gamma}^2} = (1 - \phi)\mathcal{L}(\phi)^2. \quad (1.11)$$

L'augmentation de la viscosité avec la fraction volumique est alors déterminée par la fonction 'levier', qui diverge au jamming comme le montre des simulations numériques discrètes [29], cf. figure 1.12a. L'interprétation physique de cette divergence est géométrique : pour des particules rigides, la déformation du milieu se fait selon l'ensemble des modes mous (floppy modes) disponibles, c'est-à-dire ceux qui permettent de satisfaire la non-interpénétration des particules. Or en s'approchant du jamming, le nombre de modes mous disponibles diminue, et pour déformer le milieu, les particules doivent alors suivre des mouvements de plus en plus tortueux, voir figure 1.12b. Les déplacements non-affines des particules sont alors de plus en plus importants, entraînant une augmentation de la fonction de levier.

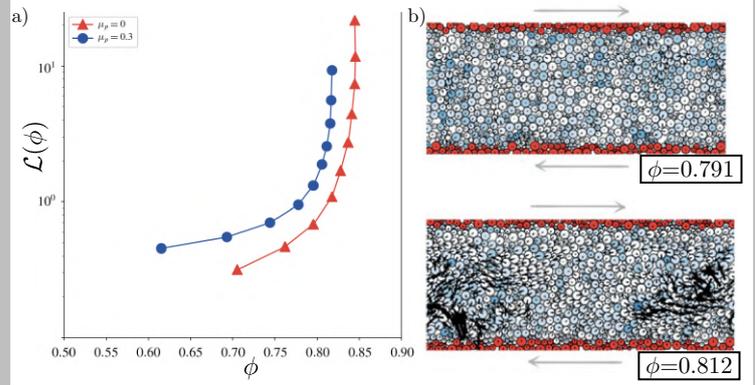


FIGURE 1.12 – a) Fonction de levier  $\mathcal{L}$  versus  $\phi$ . b) Fluctuations de vitesses des particules pour deux fractions volumiques proche du jamming. Adapté de [16]

### 1.2.3 Volume imposé versus Pression imposée

Nous avons montré jusqu'ici que la rhéologie des suspensions de particules peut être décrite selon deux approches différentes, à *volume imposé* ou à *pression imposée*. La figure 1.13 présente ces deux configurations en précisant, pour chacune d'elles, les paramètres de contrôle, les grandeurs mesurées, et les lois constitutives correspondantes. À volume imposé, la rhéologie de la suspension est Newtonienne et le paramètre sans dimension qui contrôle le système est la fraction volumique  $\phi$ . À pression imposée, la rhéologie de la suspension présente un seuil d'écoulement  $\mu_c P_p$  et cette fois, le paramètre sans dimension qui contrôle le système est le nombre visqueux  $J = \eta_f\dot{\gamma}/P_p$ . Il est important de remarquer que ces deux approches sont formellement équivalentes, au moins en régime stationnaire. En effet, en utilisant le fait que la fonction  $J \rightarrow \phi(J)$  est une bijection, on peut écrire :  $\tau = \eta_f(\mu(J(\phi))/J(\phi))\dot{\gamma}$  et

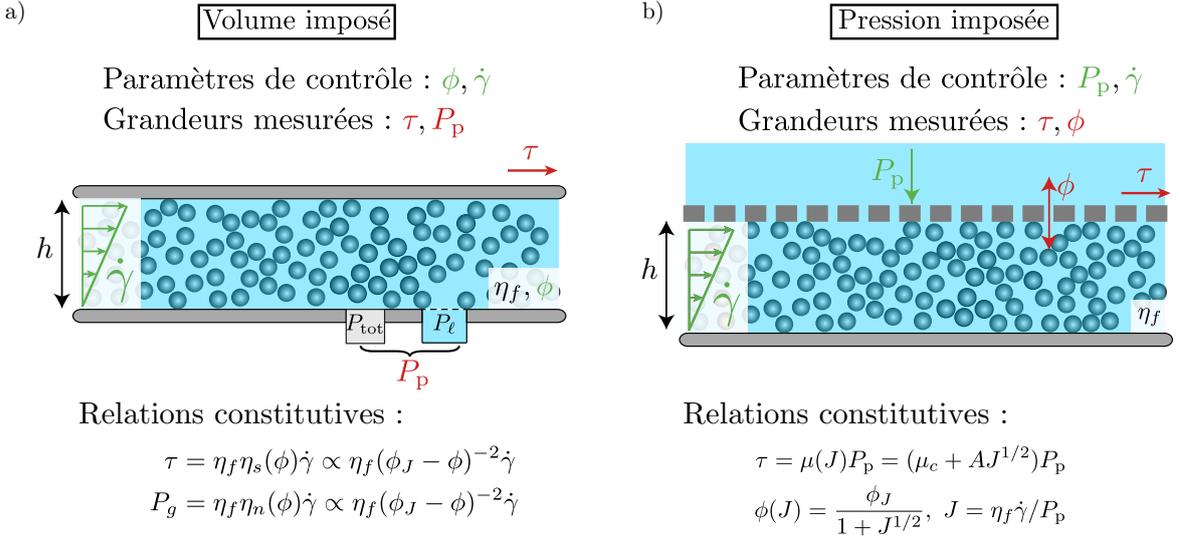


FIGURE 1.13 – Comparaison des configurations a) volume imposé et b) pression imposée pour caractériser la rhéologie des suspensions classiques (avec frottement).

$P_p = \eta_f (1/J(\phi)) \dot{\gamma}$ , ce qui permet d'exprimer les relations constitutives à volume imposé (cf. Equ. 1.2 et 1.4) en fonction du formalisme pression imposée :

$$\begin{aligned} \eta_s(\phi) &= \frac{\mu(J(\phi))}{J(\phi)}, \\ \eta_m(\phi) &= \frac{1}{J(\phi)}. \end{aligned} \tag{1.12}$$

On peut donc aisément passer d'une approche à l'autre. Néanmoins, chacune de ces approches possède des spécificités propres qui sont plus ou moins adaptées en fonction du type de mesures à réaliser ou de la suspension que l'on souhaite caractériser.

L'approche volume imposé, figure 1.13a, est largement plus employée de part son accessibilité (rhéomètres commerciaux) et du fait de la relative simplicité des protocoles expérimentaux à mettre en oeuvre. Il est néanmoins important de souligner que dans la plupart des cas, cette approche ne donne pas accès à pression granulaire  $P_p$  et donc à la seconde loi constitutive (Equ. 1.4) caractérisant la suspension. Par ailleurs, cette approche n'est pas adaptée à la caractérisation des suspensions très denses proche du jamming. En effet, il est très difficile de préparer une suspension homogène à forte fraction volumique sans y introduire de bulles d'air, puis de l'insérer dans la configuration de mesure. De plus, la divergence des contraintes lorsque  $\phi \rightarrow \phi_J$  tend à induire de fortes fluctuations sur les mesures.

L'approche pression imposée est beaucoup moins répandue car elle nécessite un développement expérimental dédié (pas de rhéomètres commerciaux). En revanche, cette approche est adaptée aux suspensions très denses car la fraction volumique peut sans difficulté être augmenté *in situ* jusqu'au Jamming en diminuant  $J$ . De plus, la mesure du coefficient de friction macroscopique  $\mu(J) = \tau/P_p = \eta_s/\eta_m$  est particulièrement avantageuse car les divergences sur  $\eta_s$  et  $\eta_m$  s'annulent ; le paramètre mesuré  $\mu$  garde ainsi une valeur finie facilement mesurable. On verra par la suite que ces caractéristiques rendent l'approche *pression imposée* particu-

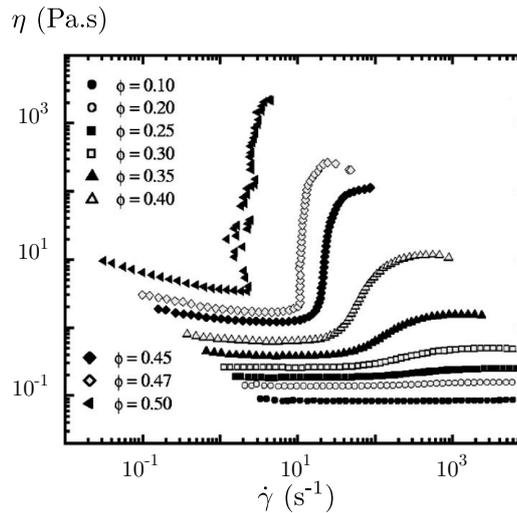


FIGURE 1.14 – Viscosité de cisaillement  $\eta$  versus taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour différentes fractions volumiques en particules  $\phi$  : suspension rhéo-épaississante de carbonate de calcium dans du polyéthylène glycol [41]

lièrement adaptée à l'étude des suspensions rhéo-épaississantes, que l'on peut aborder dès à présent.

## 1.3 Rhéologie des suspensions rhéo-épaississantes

### 1.3.1 Phénoménologie

Le rhéo-épaississement est un des phénomènes les plus spectaculaire observé dans les fluides complexes. Il a lieu dans certaines suspensions, qui au-delà d'un taux de cisaillement critique, voient leur viscosité augmenter brutalement, parfois sur plusieurs ordres de grandeur, voir figure 1.14.

À faible fraction volumique, le comportement rhéologique de la suspension est quasi-Newtonien avec un viscosité indépendante du taux de cisaillement. À fraction volumique plus élevée, on observe que la viscosité passe continûment d'un plateau de faible viscosité à un plateau de viscosité plus élevé à fort taux de cisaillement : on parle de *continuous shear-thickening (CST)*. Pour des fractions volumiques encore plus élevées, cette augmentation de la viscosité devient discontinue, et l'on parle alors de *discontinuous shear thickening (DST)*. Enfin, pour les fractions volumiques les plus grandes, la viscosité diverge, c'est le *shear-jamming (SJ)*.

À notre connaissance, la première étude reportant ce phénomène date de 1938. Dans cet article, Freundlich et Röder étudient le déplacement d'une sphère dans une suspension de poudre de quartz, et mesurent la relation entre la force appliquée sur la sphère et sa vitesse, cf. figure 1.15. Ils observent qu'au delà d'une certaine fraction volumique  $\phi$ , le comportement de la suspension devient fortement non-Newtonien : quelque soit la force appliquée, la sphère se déplace toujours à la même vitesse ! Depuis, le rhéo-épaississement a été observé dans un grand nombre de suspensions, fait l'objet de nombreuses études expérimentales et numériques et des interprétations très diverses de l'origine du rhéo-épaississement ont été proposés ; une

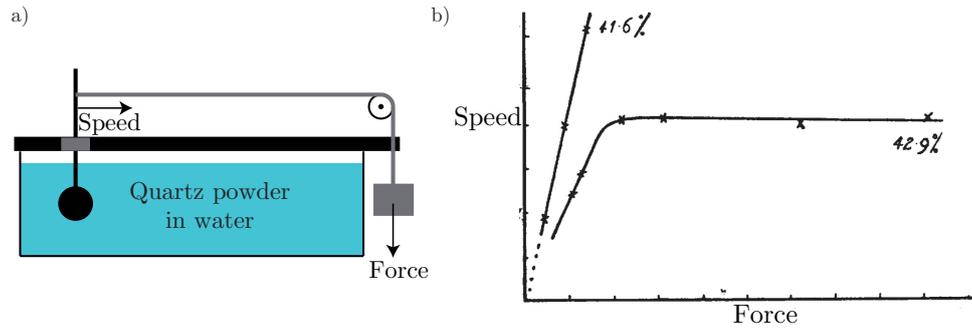


FIGURE 1.15 – Expérience de Freundlich et Röder [49]. a) Dispositif expérimental. b) Vitesse de la sphère en fonction de la force appliquée pour deux fractions volumiques.

revue de ces travaux peut être consultée dans l’introduction de la thèse de C. Clavaud [42]. Par souci de concision, on retiendra ici seulement les points essentiels qui caractérisent les suspensions rhéo-épaississantes :

- Les particules sont relativement petites, de diamètre  $d$  typiquement inférieur à  $50 \mu\text{m}$  [5, 41, 43, 44].
- Le mouvement Brownien n’est pas essentiel. Bien qu’un grand nombre de suspension de particules Browniennes soient rhéo-épaississantes, et que la Dynamique Stockesienne [30, 31] ait mis en évidence un léger comportement rhéo-épaississant à fort taux de cisaillement dans des suspensions Browniennes, l’expérience montre que certaines suspensions non-Browniennes sont aussi rhéo-épaississantes. C’est le cas par exemple de l’emblématique mélange de grains d’amidon de maïs ( $d \approx 15 \mu\text{m}$ ) et d’eau (Maïzena) [44].
- La physico-chimie joue un rôle important. Le comportement rhéo-épaississant d’une suspension dépend de la nature des particules et du fluide suspendant, et il peut disparaître si l’on change la composition, le pH ou la concentration ionique du fluide suspendant [43, 45–48].

Cet ensemble de caractéristiques suggère que le rhéo-épaississement ne peut être expliqué simplement en invoquant des interactions purement mécaniques entre les particules (frottement de Coulomb, hydrodynamique), mais que des interactions colloïdales rentrent en jeu.

### 1.3.2 Applications industrielles

Certains ciments frais, l’encre, la peinture, le chocolat liquide sont autant d’exemples de suspensions rhéo-épaississantes que l’on retrouve dans l’industrie. Bien souvent le comportement rhéo-épaississant de ces suspensions pose des problèmes majeurs pour leur transport. En effet, l’augmentation brutale de la viscosité de la suspension peut endommager les pompes, boucher les tuyaux ou encore abîmer les pâles des mélangeurs... Cependant, malgré ces difficultés et la compréhension parcellaire du rhéo-épaississement, les industriels ont aussi su tirer parti de ce comportement pour développer certaines applications, cf. figure 1.16. Par exemple, le développement des bétons dit “modernes” provient d’une découverte arrivée par hasard : des travailleurs américains ont remarqué qu’ajouter une petite quantité de polymères au béton frais peut améliorer grandement ses propriétés d’écoulement. Depuis, l’ajout de polymères,

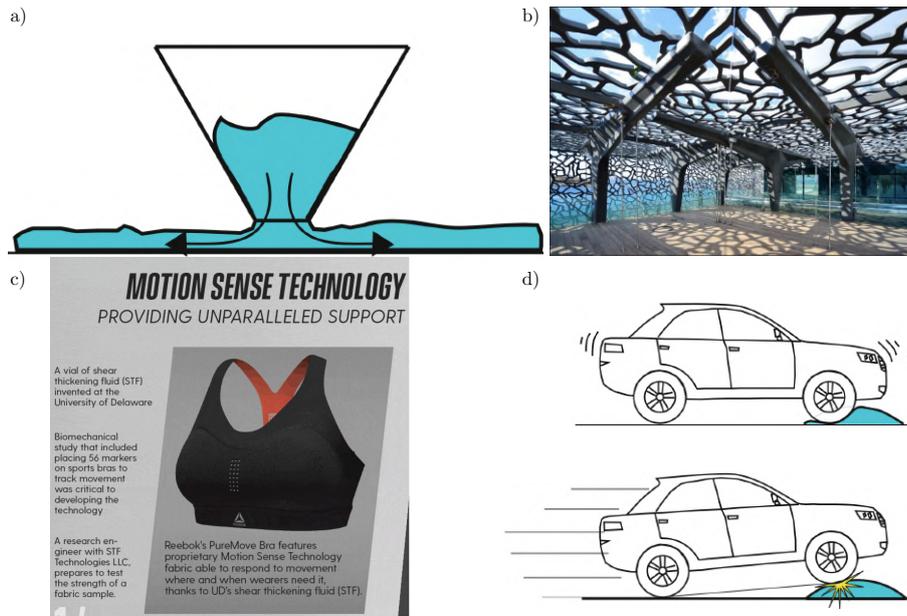


FIGURE 1.16 – Applications industrielles liées aux suspensions rhéo-épaississantes. a) Béton moderne de haute coulabilité [45]. b) Structures élancées en béton moderne, musée du Mucem, Marseille, d’après Acpresse. c) Brassière de sport se rigidifiant lors de mouvements brusques, publicité Reebok. d) Dos d’âne intelligent se solidifiant au delà de la vitesse limite de circulation. [45]

appelés "superplastifiants" dans le béton s’est généralisé. Les industriels s’intéressent aux mécanismes selon lesquels ces polymères réduisent la viscosité du béton frais, afin d’en améliorer la coulabilité. D’autres applications exploitent le rhéo-épaississement des suspensions pour développer des vêtements protecteurs. Ainsi, la marque de vêtements de sport Reebok a développé une brassière intégrant une suspension rhéo-épaississante qui se rigidifie lors des chocs violents en course. Enfin, la société espagnole Badennova propose aujourd’hui un nouveau dos d’âne “intelligent” qui se déforme à faible vitesse, mais qui se rigidifie au-delà de la vitesse maximale de circulation.

### 1.3.3 Une explication du rhéo-épaississement : le modèle de transition frictionnelle

Nous avons vu au chapitre précédent que la viscosité d’une suspension ‘classique’, i.e. composée de particules non Browniennes, rigides et frottantes immergées dans un fluide visqueux et Newtonien, ne dépend que de la fraction volumique en particules  $\phi$ . Ce résultat provient directement de l’analyse dimensionnelle car à volume imposé,  $\phi$  est le seul paramètre sans dimension qui caractérise la suspension. En effet, nous avons quatre paramètres de contrôle :  $d$ ,  $\eta$ ,  $\phi$  et  $\dot{\gamma}$  qui dépendent de trois dimensions : la masse, la longueur et le temps. Le théorème de Vaschy-Buckingham implique alors que le système est contrôlé par  $4 - 3 = 1$  nombre sans

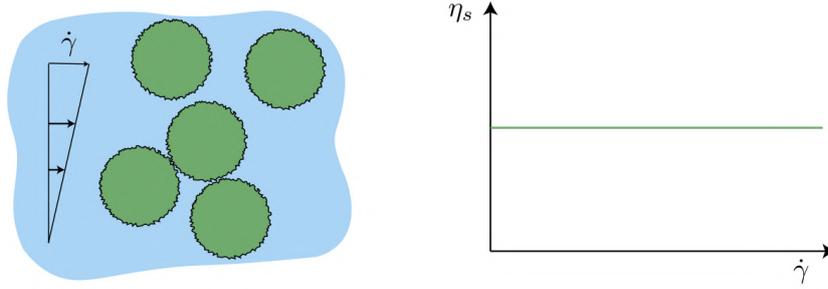


FIGURE 1.17 – La viscosité d’une suspension ‘classique’ (particules non Browniennes, rigides et frottantes immergées dans un fluide visqueux Newtonien) est, par analyse dimensionnelle, indépendante du taux de cisaillement.

dimension : la fraction volumique  $\phi$ . Ainsi, par analyse dimensionnelle, nous savons que

$$\eta_s = f(\phi), \quad (1.13)$$

où  $f$  est une fonction indéterminée. Cette analyse dimensionnelle implique un résultat important : la viscosité d’une telle suspension est indépendante du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , voir figure 1.17. Comment alors expliquer l’augmentation de la viscosité avec le taux de cisaillement observée pour les suspensions rhéo-épaississantes ?

L’idée principale pour expliquer le rhéo-épaississement est d’introduire, dans une suspension frottante, une échelle de force supplémentaire au problème, en faisant l’hypothèse que les grains interagissent via une force répulsive courte portée [24, 50, 51]. En effet, en raison de la petite taille des particules,  $d < 50\mu\text{m}$ , l’effet d’une double couche électronique [52], ou d’interactions entre polymères adsorbés à la surface des particules peut devenir non négligeable devant les contraintes de cisaillement [53]. L’encadré ‘Origine des forces répulsives entre particules’ 1.3.3 détaille l’origine et l’expression de ces forces répulsives dans deux cas particuliers. D’un point de vue dimensionnel, l’introduction de cette nouvelle échelle de force  $F_{\text{rep}}$  est très importante car on peut à présent construire un nouveau nombre sans dimension  $\dot{\Gamma} = \eta_f \dot{\gamma} d^2 / F_{\text{rep}}$ , qui compare la contrainte de cisaillement  $\eta_f \dot{\gamma}$  à la pression de répulsion  $F_{\text{rep}}/d^2$  induite par la force répulsive. La viscosité adimensionnée de la suspension devient alors une fonction dépendant de deux nombres sans dimension

$$\eta_s = f(\phi, \dot{\Gamma} = \frac{\eta_f \dot{\gamma} d^2}{F_{\text{rep}}}), \quad (1.14)$$

qui fait maintenant apparaître une dépendance au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  imposé.

Il est alors possible d’expliquer le rhéo-épaississement de la suspension comme le résultat d’une *transition frictionnelle*. En effet, à faible taux de cisaillement, lorsque  $\dot{\Gamma} \ll 1$ , les particules sont maintenues à distance par la force répulsive et peuvent alors glisser sans frottement les unes contre les autres : la viscosité de la suspension est faible, cf. figure 1.19. À l’inverse, à fort taux de cisaillement, lorsque  $\dot{\Gamma} \gg 1$ , les forces de cisaillement visqueuses dominent les forces répulsives et les particules sont poussées au contact solide : la dynamique de la suspension implique alors la friction solide entre particules. La présence d’une force répulsive entre les particules induit ainsi une transition entre un état non-frottant des particules lorsque

$\dot{\Gamma} \ll 1$ , vers un état frottant lorsque  $\dot{\Gamma} \gg 1$ .

### Origine des forces répulsives inter-particules

**a) Répulsion électrostatique :** Prenons l'exemple de particules de silice  $\text{SiO}_2$  immergée dans de l'eau à pH neutre. Il se produit à la surface des particules la réaction acido-basique  $\text{SiO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{SiO}^- + \text{H}_3\text{O}^+$  qui induit la formation d'une double couche électronique, cf. figure 1.18a. Les particules interagissent alors via une force répulsive de la forme  $F_{\text{rep}}(z) = F_0 \exp(-z/\lambda_D)$ , où  $F_0$  est l'amplitude de la force répulsive,  $\lambda_D$  sa portée et où  $z$  est la distance inter-particules. Pour des particules de diamètre  $d = 20 \mu\text{m}$ , immergées dans de l'eau pure, l'amplitude de la force répulsive  $F_0 \simeq d \times 1 \text{ mN/m} \simeq 20 \text{ nN}$ , et la longueur de Debye  $\lambda_D \simeq 1 \mu\text{m}$  [52]. Dans un cisaillement, les particules peuvent entrer en contact solide frictionnel (i.e. lorsque  $z = 2\ell_r$ , où  $\ell_r$  est la rugosité des particules) si les contraintes de cisaillement dépassent la contrainte critique  $\tau_c \simeq F_{\text{rep}}(2\ell_r)/d^2 \simeq 50 \text{ Pa}$ , en prenant  $\ell_r \simeq 4 \text{ nm}$ .

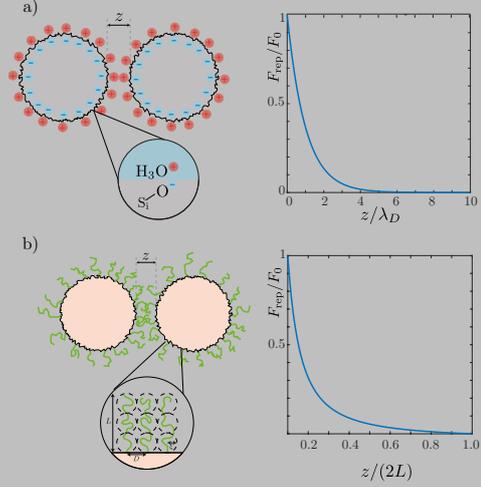


FIGURE 1.18 – Force répulsive d'origine a) électrostatique, b) stérique.

**b) Répulsion stérique :** La présence de brosses de polymères à la surface des particules peut aussi induire une force répulsive [47, 53]. Ces polymères peuvent être présents naturellement à la surface des particules, ce qui est le cas de l'amidon de maïs, mais peuvent aussi être ajoutés lors de la formulation de la suspension [54]. Lorsque deux brosses planes de polymères entrent en contact, la fraction volumique en polymères  $\phi_p$  augmente dans chaque brosse, ce qui induit une augmentation de la pression osmotique. Notons que cela se produit uniquement si l'affinité des polymères pour le fluide est supérieure à celle des polymères pour les autres polymères (on parle alors de bon solvant). Une seconde contribution à la force répulsive est l'élasticité entropique due à la restriction des conformations possibles pour chaque chaîne de polymère. Pour obtenir une expression de ces forces, on peut raisonner en loi d'échelles comme proposé dans [55], en se plaçant dans le cas bon solvant. Considérons une brosse de polymère telle que représentée en inset de la figure 1.18b. La longueur d'un monomère est  $a$ , la taille d'un blob est  $\xi$ , la longueur de la chaîne à l'équilibre est  $L$ , et la distance entre les polymères est  $D$ . La fraction volumique en polymère varie avec la distance  $z$  entre les brosses comme  $\phi_p \propto 2L/z$ . La pression osmotique  $\Pi$  est  $\Pi \simeq k_B T / \xi^3$ , avec  $\xi \simeq a\phi_p^{-3/4}$ , soit  $\Pi \simeq k_B T (2L/z)^{9/4} / a^3$ . La force élastique par unité de surface est donnée par  $P_{el} \simeq k_B T \xi / D^2$ , soit  $P_{el} \simeq a k_B T (2L/z)^{-3/4} / D^2$ . En faisant l'approximation de Derjaguin, on obtient la force entre deux sphères de diamètre  $d$ ,

$$F_{\text{rep}} \propto k_B T \frac{Ld}{D^3} \left[ \left( \frac{2L}{z} \right)^{5/4} + \frac{5}{7} \left( \frac{2L}{z} \right)^{-7/4} - \frac{12}{7} \right], \quad (1.15)$$

représentée sur la figure 1.18b.

Cette *transition frictionnelle* a un effet majeur sur la rhéologie de la suspension, car comme on l'a vu plus haut, la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  dépend du coefficient de friction microscopique  $\mu_p$  des particules. Typiquement, la viscosité d'une suspension diverge

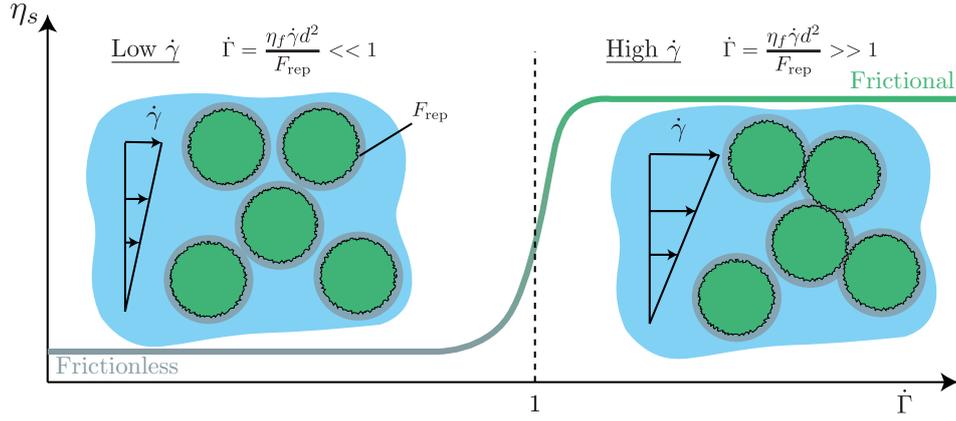


FIGURE 1.19 – Schéma explicatif de *la transition frictionnelle* : à faible taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , les forces répulsives dont la portée est représentée en gris, maintiennent les grains à distance. Les particules glissent alors facilement les unes contre les autres sans frotter : la viscosité est faible. A fort  $\dot{\gamma}$ , les contraintes de cisaillement dominent les forces répulsives et les particules sont poussées au contact solide. La dynamique de la suspension implique alors la friction solide qui est fortement dissipative : la viscosité augmente.

en  $\phi_0 = 0.64$  si les particules sont non-frottantes, mais en  $\phi_1 = 0.58$  lorsque les particules sont frottantes. Pour une suspension rhéo-épaississante, augmenter la contrainte de cisaillement est équivalent à rapprocher la suspension de son point critique de jamming : cela explique l'augmentation, parfois dramatique, de la viscosité, comme illustré sur la figure 1.20. Une suspension composée de grains frictionnels répulsifs peut donc suivre deux branches rhéologiques différentes : Lorsque  $\dot{\Gamma} \ll 1$ , les grains se comportent tels des grains non-frottants et la viscosité de la suspension suit alors une loi<sup>4</sup> de type  $\eta_s \sim (\phi_0 - \phi)^{-2}$ , cf. figure 1.20a. En revanche, lorsque  $\dot{\Gamma} \gg 1$ , les grains deviennent frottants et la viscosité est alors donnée par la loi  $\eta_s \sim (\phi_1 - \phi)^{-2}$ . Pour une fraction volumique donnée, augmenter le taux de cisaillement augmente la contrainte, ce qui permet de passer de la branche non-frottante à frottante. On voit que ce scénario, illustrée sur la figure 1.20a et b, permet d'expliquer qualitativement les différents régimes CST, DST, et SJ observés expérimentalement.

Ce mécanisme de *transition frictionnelle* a été rationalisé par Wyart & Cates en 2014 [51]. Il s'agit simplement d'écrire que la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  d'une suspension rhéo-épaississante dépend de  $f$ , la fraction de contacts frottants, qui elle-même dépend de la contrainte de cisaillement  $\tau$  appliquée. La viscosité de la suspension est alors donnée par

$$\eta_s(\phi, f) = (\phi_J(f) - \phi)^{-2}, \quad (1.16)$$

où  $\phi_J(f)$  s'écrit comme une loi de mélange

$$\phi_J(f) = (1 - f)\phi_1 + f\phi_0, \quad (1.17)$$

qui interpole la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  entre les fractions volumiques critiques non-frottante  $\phi_0$  et frottante  $\phi_1$ . Pour la fraction de contact frottant en fonction de la contrainte,

4. Par simplicité, on suppose ici que l'exposant de divergence est le même pour les deux branches.

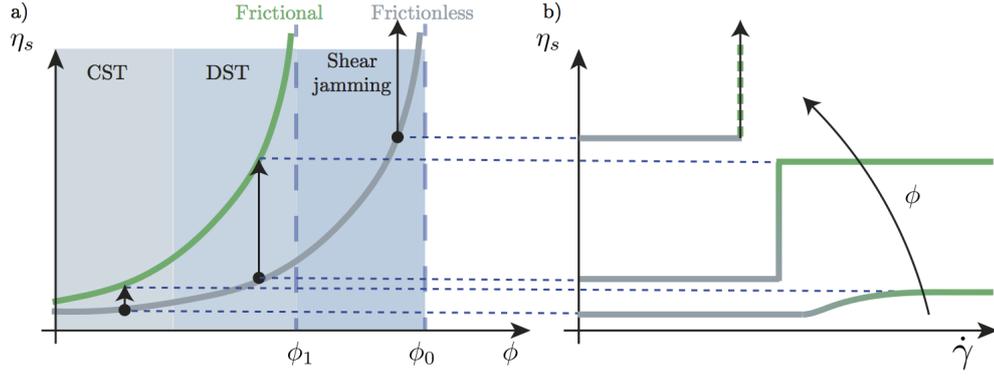


FIGURE 1.20 – a) Viscosité d'une suspension de grains frictionnels répulsifs versus volume fraction : deux branches rhéologiques sont accessibles en fonction de l'état frictionnel des particules. b) Viscosités correspondantes versus  $\dot{\gamma}$  pour trois fractions volumiques différentes.

Wyart et Cates proposent une fonction d'interpolation simple du type

$$f(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau_c}{\tau}\right), \quad (1.18)$$

où  $\tau_c$  est la contrainte de cisaillement critique au delà de laquelle les contacts passent de non-frottants à frottants. La figure 1.21 représente les rhéogrammes prédits par le modèle de transition frictionnelle utilisant les paramètres :  $\eta_f = 10^{-3}$  Pa.s,  $\tau_c = 10$  Pa,  $\phi_1 = 0.58$  et  $\phi_0 = 0.64$ . On peut observer plusieurs points :

- Le modèle capture les trois régimes de transitions : continuous shear-thickening (CST), discontinuous shear thickening (DST) et shear jamming (SJ).
- Au delà d'une fraction volumique critique appelée  $\phi_{\text{DST}}$ , les rhéogrammes  $\tau(\dot{\gamma})$  prennent la forme d'un 'S' : une partie des rhéogrammes suit alors une pente négative ( $\partial\tau/\partial\dot{\gamma} < 0$ ). Cette fraction volumique marque le seuil d'une transition discontinue de la viscosité.
- Pour  $\phi > \phi_1$ , la rhéologie devient ré-entrante : lorsque  $\tau > \tau_c$  la viscosité de la suspension diverge.

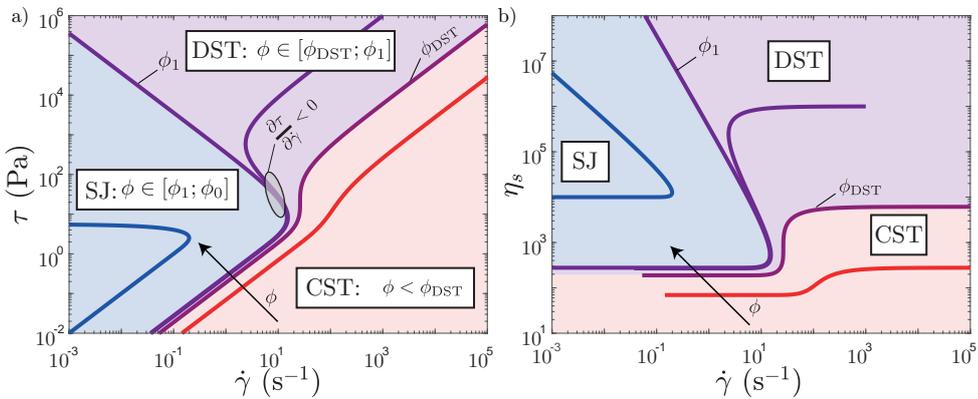


FIGURE 1.21 – Modèle de transition frictionnelle utilisant les paramètres :  $\eta_f = 10^{-3}$  Pa.s,  $\tau_c = 10$  Pa,  $\phi_1 = 0.58$  et  $\phi_0 = 0.64$  : a) Contrainte de cisaillement  $\tau$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . b) Viscosité  $\eta_s$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ .

Notons que ce modèle peut être transposé au formalisme pression imposée : le coefficient de friction macroscopique  $\mu$  et la fraction volumique  $\phi$  de la suspension sont alors fonction de  $J$ , comme dans le cas des suspensions classiques, mais aussi d'un second nombre sans dimension comparant la pression granulaire imposée  $P_p$  à la pression nécessaire pour mettre les particules en contact  $P^* \simeq F_{\text{rep}}/d^2$ . On obtient alors des lois du type  $\mu = \mu(J, P_p/P^*)$  et  $\phi = \phi(J, P_p/P^*)$  que l'on développera plus en détail au chapitre 4 § 4.1.

Nous allons voir dans la suite que le modèle de transition frictionnelle est soutenu par un certain nombre de travaux numériques et expérimentaux récents.

### Validations numériques :

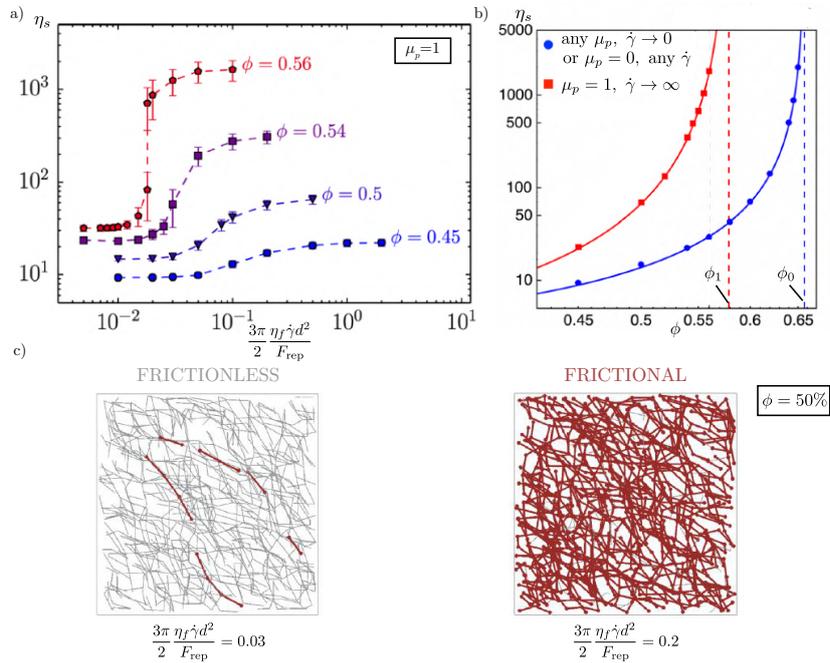


FIGURE 1.22 – Simulations numériques discrètes d'une suspension rhéoépaississante [24]. a) Viscosité en fonction de  $3\pi\eta_f\dot{\gamma}d^2/2F_{\text{rep}} = 3\pi/2 \dot{\Gamma}$  pour différentes fraction volumiques b) Viscosité en fonction de la fraction volumique obtenues dans les limites  $\dot{\gamma} \rightarrow 0$  et  $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$ . c) A faible taux de cisaillement les contacts frottants, surlignés en rouge, sont rares, mais prolifèrent à fort taux de cisaillement.

Les idées du mécanisme de transition frictionnelle ont initialement émergées de simulations numériques discrètes réalisées dans le groupe de Jeffrey Morris à NYU en 2013 [24, 50]. Les auteurs ont introduit dans une code de DEM (Discrete Element Method) les ingrédients clés à l'origine du rhéo-épaississement : des particules frictionnelles interagissant via une force répulsive courte portée. Ces simulations ont été les premières à capturer quantitativement les rhéogrammes typiques des suspensions rhéo-épaississantes, cf. figure 1.22a, et à mettre en évidence la transition frictionnelle à l'origine de l'augmentation de la viscosité de la suspension, cf. figure 1.22b.

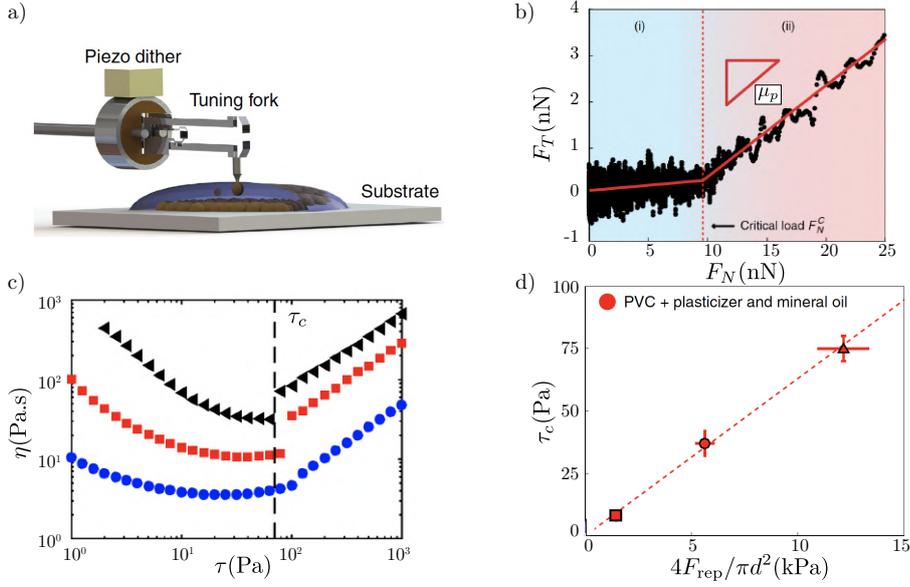


FIGURE 1.23 – Mesure AFM pour caractériser le coefficient de friction  $\mu_p$  entre deux particules d’une suspension rhéo-épaississante. [56] a) Dispositif expérimental. b) Force tangentielle  $F_T$  en fonction de la force normale  $F_N$ . La pente donne la valeur du coefficient de friction microscopique  $\mu_p$ . c) Viscosité en fonction de la contrainte de cisaillement pour une suspension de PVC dans du Dinch, pour différentes fractions volumique en particules. Le rhéo-épaississement se produit lorsque  $\tau > \tau_c$ . d) Contrainte de cisaillement critique  $\tau_c$  en fonction de la force répulsive, pour des billes de PVC et pour différentes concentrations en Dinch.

### Validations expérimentales :

**Transition frictionnelle à l’échelle microscopique [56] :** Ces expériences microscopiques, i.e. à l’échelle d’un seul grain, utilisent une technique AFM avancée (cf. figure 1.23a) afin de caractériser le coefficient de frottement inter-particules  $\mu_p$  de grains d’une suspension rhéo-épaississante (particules de PVC dans du Dinch) [56]. Le résultat marquant est que pour ces grains, le coefficient de friction  $\mu_p$  dépend de la force normale appliquée, cf. figure 1.23b. Les mesures montrent qu’en dessous d’une force normale critique  $F_N^C \simeq 10$  nN, le coefficient  $\mu_p \simeq 0$  (particules non-frottantes), et qu’au-dessus,  $\mu_p \simeq 0.45$  (particules frottantes).

La force répulsive à l’origine de cette transition frictionnelle (à l’échelle du contact entre deux grains) résulte de la présence de brosses de polymères à la surface des particules. Les auteurs font aussi le lien entre la force critique mesurée  $F_N^C$  à l’échelle microscopique et la contrainte de cisaillement critique macroscopique nécessaire pour induire le rhéo-épaississement de la suspension, cf. figure 1.23c et d.

Ces résultats montrent que les particules d’une suspension rhéo-épaississante ont un comportement frictionnel singulier. Alors que pour une suspension classique (Newtonienne), la friction inter-grain est de type Coulombienne, i.e. indépendante de la force normale appliquée. Ici, en raison de la force répulsive induite par le coating de polymères,  $\mu_p$  passe de 0 à 0.45 lorsque les contraintes augmentent.

### Transition frictionnelle à l’échelle macroscopique :

a) **En variant la force répulsive [45].** La transition frictionnelle d’une suspension rhéo-

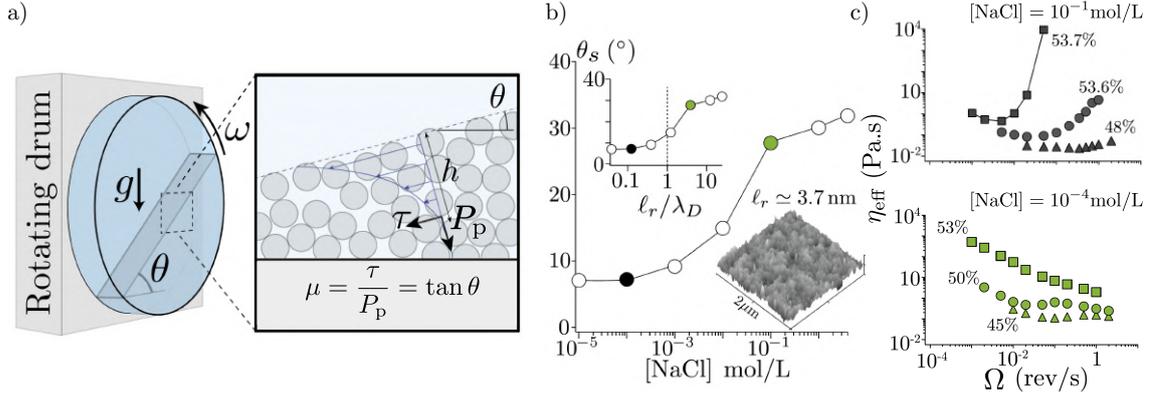


FIGURE 1.24 – Mise en évidence de la transition frictionnelle dans un tambour tournant [45]. a) Dispositif expérimental. La mesure de l’angle d’avalanche  $\theta$  permet d’accéder directement à l’état frictionnel de la couche granulaire en écoulement. b) Angle d’avalanche  $\theta$  versus concentration en sels  $[\text{NaCl}]$ , (Inset)  $\theta$  versus rapport entre la rugosité des particules et la longueur de Debye  $\ell_r/\lambda_D$ . c) Rhéogrames correspondant de la suspension pour deux valeurs de concentration en sel. Haut : la rhéologie est rhéo-épaississante. Bas : la rhéologie est non rhéo-épaississante.

épaississante a été mise en évidence à l’échelle de l’écoulement au cours de la thèse de Cécile Clavaud qui m’a précédée (2015-2018), à l’aide d’un dispositif de type tambour tournant. Dans cette configuration, la mesure de l’angle d’avalanche  $\theta$  donne directement accès au coefficient de friction macroscopique de la suspension  $\mu = \tau/P_p = \tan \theta$ , cf. figure 1.24a. Le système utilisé est une suspension de billes de silice immergées dans une solution aqueuse dont la concentration en ions NaCl permet de contrôler la portée  $\lambda_D$  de la force répulsive selon  $\lambda_D \propto 1/\sqrt{[\text{NaCl}]}$ .

Cette expérience montre que dans de l’eau quasi-pure, i.e. lorsque la portée de la force est maximale, l’angle d’avalanche  $\theta$  vaut  $\theta \simeq 6^\circ$ , cf. figure 1.24b. Cette valeur correspond à l’angle d’avalanche d’une assemblée de grains non-frottants ( $\mu_p = 0$ ) prédite numériquement par DEM [28, 57]. La présence d’une force répulsive induit donc un état non-frottant des particules lorsque les grains sont soumis à une faible pression, ici correspondant au poids déjaugé de la couche de grains en écoulement, soit environ 5 Pa. Cette étude montre aussi qu’une telle suspension suit un comportement rhéo-épaississant, cf. figure 1.24c. En revanche, si la concentration en NaCl est augmentée, la force répulsive diminue et par conséquent l’angle d’avalanche augmente pour atteindre la valeur typique d’une assemblée de grains frottants ( $\theta \simeq 30^\circ$ ). Pour cette suspension de particules frottantes, le comportement rhéo-épaississant disparaît, voir figure 1.24c. Comme le montre l’insert de la figure 1.24b, la transition entre l’état frottant et l’état non-frottant a lieu lorsque la portée de la force répulsive devient de l’ordre de la rugosité des particules, i.e. pour  $\ell_r/\lambda_D \simeq 1$ .

Cette expérience constitue une première validation expérimentale des hypothèses sous-jacentes au modèle de transition frictionnelle : la présence d’une force répulsive induit un état non-frottant des particules à faible contrainte, qui est à l’origine du rhéo-épaississement. Elle ne permet cependant pas de faire de la “rhéologie” car, d’une part, la pression particulaire  $P_p$  est fixée par le poids de la couche et ne peut être variée, d’autre part les mesures sont

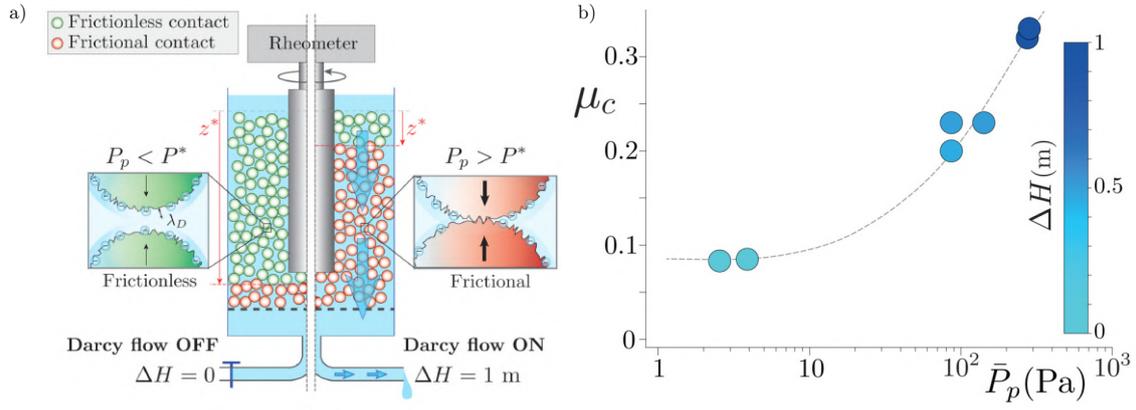


FIGURE 1.25 – Le Darcytron permet d'imposer la pression granulaire grâce à un écoulement vertical du fluide au travers de l'empilement granulaire (écoulement de type Darcy) [58]. a) Dispositif expérimental : la hauteur de la sortie d'eau  $\Delta H$  permet de contrôler l'intensité de l'écoulement vertical, et ainsi la pression granulaire. b) Coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  d'une suspension de particules de silice immergées dans de l'eau pure en fonction de la pression granulaire.

limitées au régime d'écoulement quasi-statique, *i.e.* pour des très faibles vitesses de rotation du tambour, ce qui correspond à la limite  $J \rightarrow 0$ .

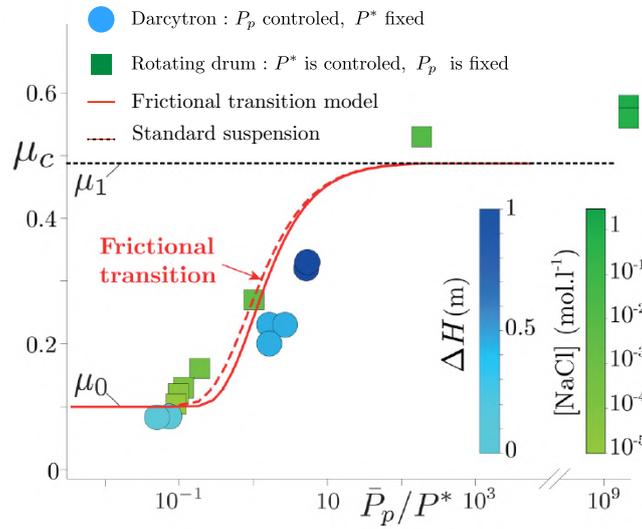


FIGURE 1.26 – Coefficient de friction quasi-statique  $\mu_p$  versus  $P_p/P^*$ . Pour le Darcytron, la pression granulaire  $P_p$  est contrôlée (par l'écoulement de Darcy) et la pression critique de répulsion  $P^*$  est fixe (eau pure). Pour le tambour tournant, la pression de répulsion critique  $P^*$  est contrôlée (par la concentration en NaCl) et la pression granulaire  $P_p$  est fixée (par la gravité).

b) **En variant la pression granulaire : Le Darcytron [58].** Afin de palier la première limite des expériences en tambour, Cécile Clavaud a développé au cours de sa thèse un dispositif, appelé Darcytron, permettant de contrôler la pression granulaire  $P_p$  sur une suspension

colloïdale (i.e. constituée de particules de taille micrométrique). La configuration consiste en une cuve remplie de grains formant un empilement placé sur une grille fixe dont on peut sonder la rhéologie grâce à un barreau cylindrique tournant, cf figure 1.25a. L'originalité de l'expérience est que la pression granulaire peut ici être contrôlée en imposant un écoulement vertical du fluide au travers de l'empilement granulaire. Cet écoulement vertical du fluide génère une contrainte verticale supplémentaire sur les grains dont on peut facilement contrôler l'intensité en ajustant la hauteur de la sortie d'eau  $\Delta H$ . C'est donc ici un écoulement vertical de type Darcy qui contrôle la pression granulaire.

En utilisant la même suspension de billes de silice que dans l'expérience précédente, cette expérience montre que pour une faible valeur de pression granulaire  $P_p$  (pas d'écoulement vertical, cf figure 1.25a à gauche), le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  de la suspension vaut  $\mu_c \simeq 0.1$ , ce qui indique à nouveau que les grains sont non-frottants [28],  $\mu_p = 0$ . En revanche si l'on augmente la pression granulaire grâce à l'écoulement de Darcy (cf figure 1.25a à droite), on observe une augmentation du coefficient de friction  $\mu_c$  de la suspension, qui rejoint la valeur d'une suspension frottante.

Les résultats des deux études précédentes peuvent être compilés en traçant le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  de la suspension en fonction de la pression granulaire  $P_p$  adimensionnée par la pression critique de répulsion  $P^*$ , cf. figure 1.26. Cette figure, qui rassemble les deux jeux de données sur une même courbe, montre qu'à pression imposée le nombre sans dimension qui contrôle la transition frictionnelle est bien  $P_p/P^*$ .

\* \* \*

Les résultats présentés ci-dessus décrivant le rhéo-épaississement telle une transition frictionnelle sont remarquables à plusieurs titres. D'abord, ils ont permis d'apporter une description cohérente à un phénomène longtemps resté inexpliqué. Ensuite, on peut souligner que ces avancées ont largement contribué à faire accepter à la communauté le rôle majeur des contacts solides frictionnels sur le comportement rhéologique des suspensions de particules. Le modèle de transition frictionnelle a ainsi suscité un fort regain d'intérêt pour les suspensions qui sont à présent appréhendées comme un système dont la rhéologie macroscopique dépend fortement de la nature microscopique des contacts entre particules. Ce nouveau paradigme a ouvert plusieurs pistes de recherche très intéressantes. Comme on le verra dans la section suivante, il est en effet à présent possible d'envisager de contrôler la rhéologie d'une suspension en contrôlant la nature des contacts entre les particules, soit par l'ingénierie de la surface des particules (friction, rugosité, physico-chimie), soit in situ grâce à des vibrations externes permettant de faire varier pendant l'écoulement la fraction de contacts frottants. De nouveaux scénarios ont aussi été proposés afin d'expliquer certaines propriétés encore mal comprises comme le comportement rhéo-fluidifiant de certaines suspensions. Enfin, le modèle de transition frictionnelle propose des lois constitutives pour les suspensions rhéo-épaississantes. Ces lois donnent pour la première fois la possibilité d'aller au-delà de la rhéologie et de tenter de prédire comment les suspensions rhéo-épaississantes s'écoulent dans des configurations hydrodynamiques plus complexes (plan incliné, Poiseuille etc..). Plus de détails sur ces nouveaux thèmes de recherches sont donnés dans la section qui suit.

## 1.4 Développements récents

### 1.4.1 Contrôle de la rhéologie des suspensions

On a vu plus haut que le coefficient de friction inter-particules affecte la fraction volumique à laquelle la viscosité de la suspension diverge. Modifier la friction inter-particules apparaît donc comme un levier efficace pour faire varier, à fraction volumique constante, la viscosité de la suspension. Cette compréhension du comportement rhéologique des suspensions donne aujourd'hui la possibilité de contrôler la rhéologie des suspensions par deux approches distinctes : soit en ajustant l'état de surface des particules, soit in situ via des vibrations externes.

#### Contrôle de la rhéologie par l'ingénierie de l'état de surface des particules

L'ingénierie des propriétés de surface des particules permet de conférer à la suspension des caractéristiques rhéologiques spécifiques. Cela peut se faire en ajustant la rugosité et/ou le coefficient de friction des particules à l'échelle nanométrique comme montré dans l'étude de Hsu *et. al* [59]. En greffant à la surface de particules de silice micrométriques des particules de silice de quelques dizaines de nanomètres, on obtient des particules en forme de framboise ('raspberries'), cf. figure 1.27a. En faisant varier le rapport entre la hauteur  $h$  et la distance  $d$  entre les aspérités, le coefficient de friction inter-particules varie et on peut ainsi ajuster la fraction volumique de jamming frictionnelle  $\phi_1$ , cf. figure 1.27b. La gamme de fractions volumiques de jamming accessible est très large passant pour les particules les plus rugueuses ( $h/d = 0.53$ ) de  $\phi_1 \simeq 45\%$ , à  $\phi_1 \simeq 58\%$  lorsque les particules sont plus lisses ( $h/d \simeq 0$ ). De plus, ajuster la rugosité permet de contrôler la contrainte critique au-delà de laquelle la suspension rhéo-épaissie, cf. figure 1.27c. Ici, la contrainte critique diminue de près de deux décades lorsque la rugosité passe de  $h/d = 0.25$  à  $h/d = 0.45$ . Cette méthode permet donc d'ajuster les caractéristiques rhéologiques de la suspension sur une large gamme.

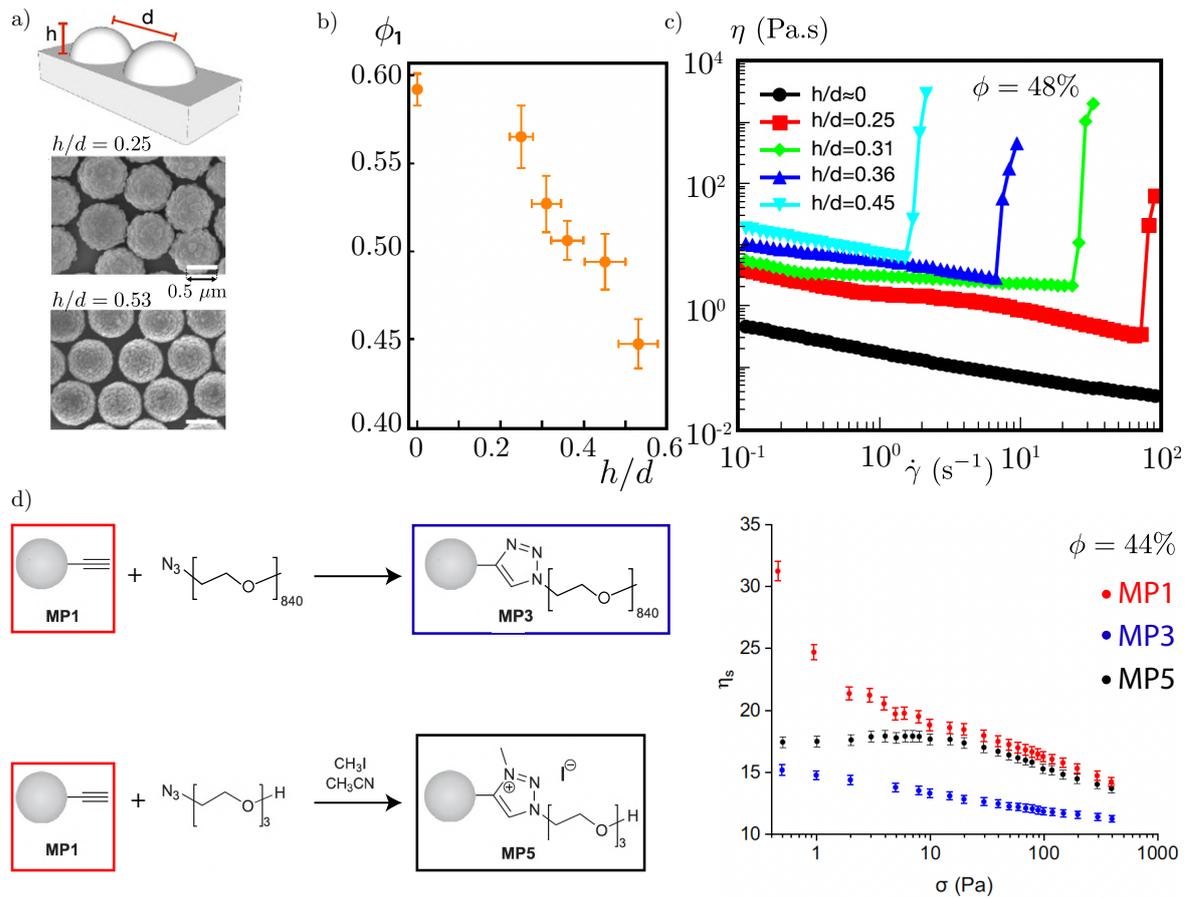


FIGURE 1.27 – Suspension colloïdale de particules de silice de rugosité contrôlées "raspberries". a) Définition du paramètre de rugosité  $h/d$  et images des particules. b) Fraction de jamming frictionnelle  $\phi_1$  en fonction de la rugosité  $h/d$ . c) Viscosité de la suspension versus taux de cisaillement pour différentes rugosités  $h/d$ . d) Principe de la "Click-chemistry". e) Viscosité versus contrainte de cisaillement pour différentes molécules greffées.

Une autre possibilité est d'ajuster la nature des interactions inter-particules en utilisant des revêtements de polymères ou en contrôlant la charge électrostatiques [60]. Dans cette étude, qui utilise la méthode de "clic-chemistry", des particules de diamètre  $d = 80 \mu\text{m}$  sont synthétisées et couvertes qu'un groupe alcyne (triple liaison C-C) auquel peut être greffé diverses molécules dans le but d'obtenir les propriétés surfaciques voulues. La figure 1.27d présente la particule MP1 et deux dérivés : la MP3 greffé d'un polymère et la MP5 chargée en surface. La figure 1.27e montre que la rhéologie de ces trois systèmes est sensiblement différente.

Le contrôle et la compréhension des interactions entre les particules sont aussi une problématique qui intéresse beaucoup les industriels, particulièrement pour la formulation de suspensions ayant une forte densité en particules mais qui s'écoulent facilement. Par exemple, dans l'industrie du chocolat, une étape appelée conchage consiste à broyer et mélanger des particules solides (cacao, sucre...) au beurre de cacao, jusqu'à obtenir du chocolat liquide. Le conchage est une technique qui a été développée par le chocolatier Suisse Rodolphe Lindt en 1879, mais dont le mécanisme physique n'a été compris qu'en 2019 par Blanco *et. al* [4]. Ils ont notamment mis en évidence que l'ajout d'émulsifiant (la lécithine) permet d'augmenter

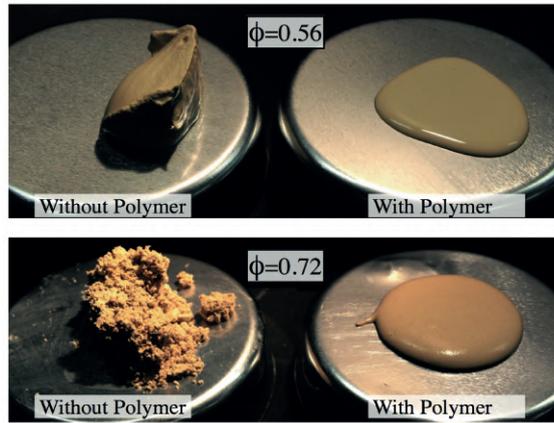


FIGURE 1.28 – Suspension de carbonate de calcium, entrant dans la composition du béton, à différentes fractions volumiques avec et sans ajout de polymères.

notamment la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  : le chocolat peut alors être riche en particules solides (donc plus pauvre en graisse) tout en restant toujours liquide. Une autre industrie très intéressée par cette problématique est celle du béton, qui cherche à obtenir des bétons faciles à couler (peu visqueux) mais très résistants une fois secs (forte densité en particules solides). Ces bétons modernes sont obtenus par ajout au ciment frais de polymères, appelés "superplastifiants", qui rendent les particules répulsives. Les industriels s'intéressent aux mécanismes selon lesquels ces polymères réduisent fortement la viscosité du béton frais, cf. figure 1.28. Le comportement rhéologique de ces bétons modernes est aujourd'hui interprété dans le cadre du modèle de transition frictionnelle [48].

### Contrôle *in situ* par vibration

Modifier la rhéologie des suspensions est aussi possible en contrôlant *in situ* la fraction de contacts frictionnels grâce à des vibrations externes. On peut citer par exemple l'étude de Lin *et. al* [61], qui montre qu'une suspension rhéo-épaissie peut être fluidisée à la demande simplement en appliquant un cisaillement périodique transverse à l'écoulement principal, cf. figure 1.29a et b.

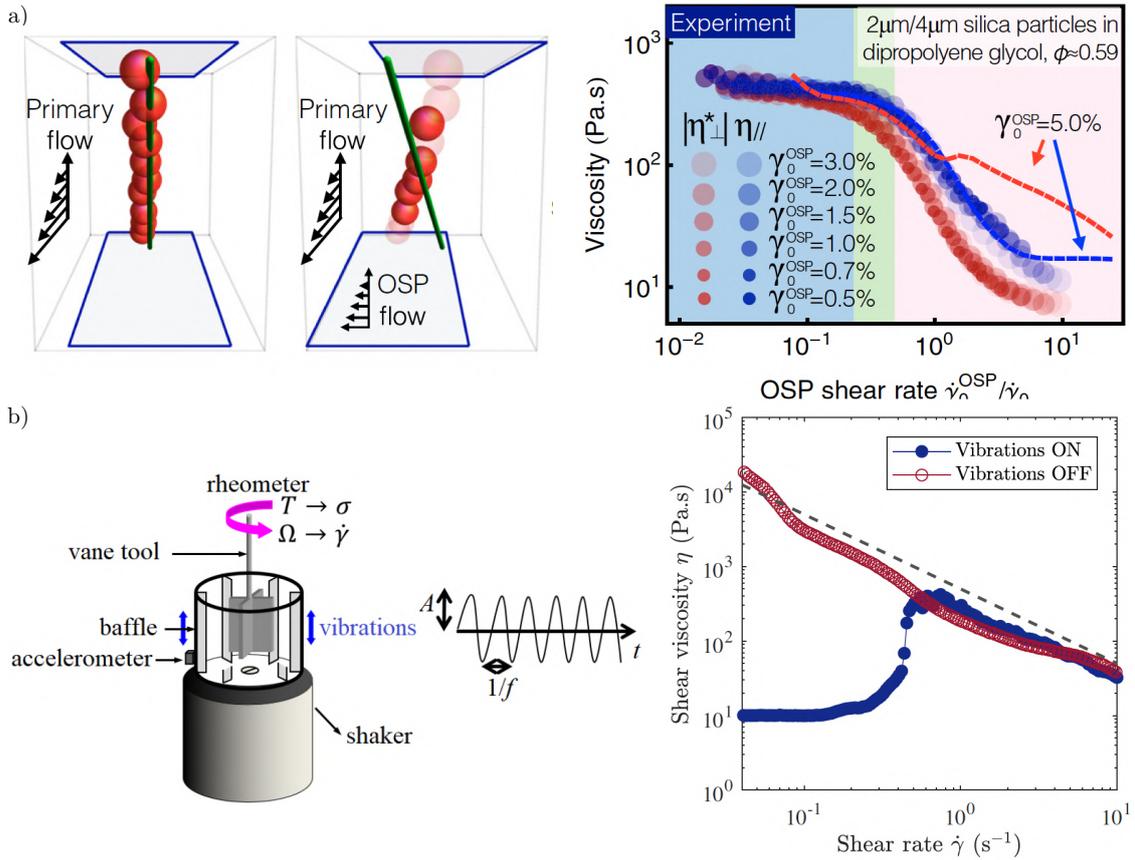


FIGURE 1.29 – Contrôle *in situ* de la rhéologie. a) Par cisaillement oscillant transverse [61]. b) Par vibrations [62].

Plus récemment, Garat *et. al* [62] ont étudié la rhéologie d'une suspension non rhéo-épaississante et ont montré que sous l'effet de vibrations la suspension devient rhéo-épaississante, voir figure 1.29. L'interprétation proposée est que l'agitation des particules induite par la vibration produit une force répulsive d'origine pseudo-thermique, dont on peut contrôler l'amplitude en agissant sur l'amplitude  $A$  et la fréquence  $f$  des vibrations.

#### 1.4.2 Vers un modèle pour expliquer la rhéo-fluidification

La dépendance de la fraction volumique de jamming au coefficient de friction inter-particules peut être utilisée pour comprendre et rationaliser la diminution de la viscosité de certaines suspensions avec le taux de cisaillement imposé. Pour ces suspensions dites rhéo-fluidifiantes, il suffit de considérer que le coefficient de friction inter-particule diminue avec la contrainte imposée. Alors selon le modèle de Wyart & Cates, cela a pour effet d'augmenter la fraction volumique critique de jamming, et ainsi de diminuer la viscosité de la suspension. Ce scénario a été proposé récemment par de Lobry *et. al* [63], et de Arshad *et. al* [64] ou encore de More *et. al* [65] en considérant que les particules interagissent via un nombre limité d'aspérités qui se déforment élastiquement. Dans ce cas, la surface de contact des particules n'est pas proportionnelle à la force normale appliquée (comme dans le cas de la friction de Coulomb). Ainsi, le coefficient de friction n'est pas indépendant de la force normale mais suit

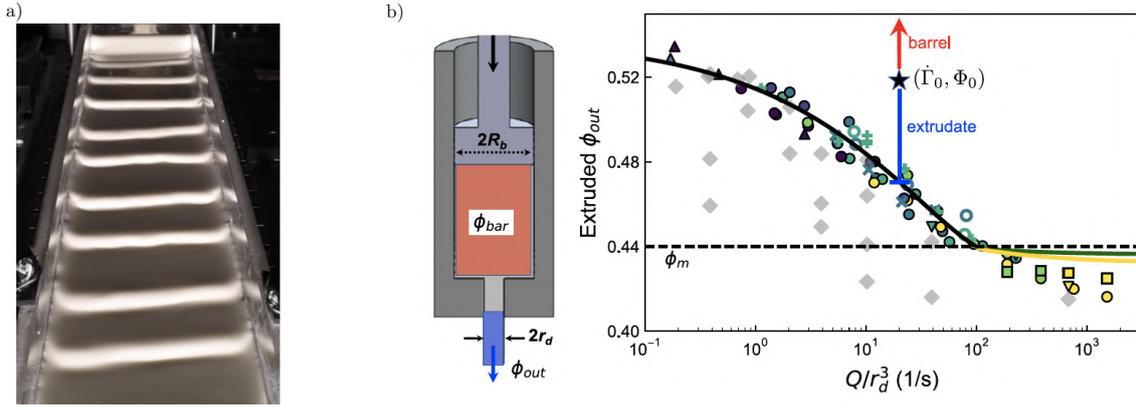


FIGURE 1.30 – a) Ondes de surfaces dans une suspension rhéo-épaississante s’écoulant à faible nombre de Reynolds sur un plan incliné. b) Une suspension rhéo-épaississante est poussée au travers d’une constriction. Fraction volumique de la suspension en sortie de constriction  $\phi_{out}$  en fonction du taux de cisaillement typique dans le petit conduit  $Q/r_b^3$ , où  $Q$  est le débit volumique de l’écoulement.

une loi de type  $\mu_p \propto F_N^{-1/3}$ , qui permet de prédire la diminution de la viscosité observée. Richards *et. al* [66] et Gilberts *et. al* [67] propose un modèle similaire pour expliquer le caractère rhéo-fluidifiant des suspensions de particules qui interagissent via des forces d’adhésion. À faibles contraintes, la présence de forces adhésives rend les mouvements relatifs des particules plus difficiles et donc la fraction volumique de jamming est diminuée. À fortes contraintes, les forces adhésives sont vaincues par les forces hydrodynamiques et l’on retrouve la fraction volumique de jamming d’une suspension classique.

### 1.4.3 Vers une hydrodynamique des suspensions rhéo-épaississantes

Les lois constitutives proposées par le modèle de transition frictionnelle donne aujourd’hui la possibilité de construire une hydrodynamique des suspensions rhéo-épaississantes afin de prédire leur écoulement dans des configurations plus complexes que celles appréhendées jusqu’à présent (principalement des configurations rhéométriques).

Un exemple édifiant est l’instabilité d’écoulement qui a lieu lorsqu’une suspension rhéo-épaississante s’écoule sur un plan incliné, cf. figure 1.30a. Cette instabilité a initialement été reporté en 2005 par Balmforth *et al.* [68] mais, à l’époque, aucun modèle ne pouvait prédire l’émergence de ces ondes de surface car aucune loi constitutive satisfaisante n’était alors disponible pour décrire les suspensions rhéo-épaississantes. C’est en 2020, que Darbois Texier *et al.* [101] ont pu proposer un modèle simple, basé sur le modèle de transition frictionnelle, qui permet de prédire le seuil d’apparition de l’instabilité, ainsi que la vitesse des ondes cinématiques observées. Un point remarquable de cette étude est qu’elle fait apparaître une classe d’onde cinématique instable sans inertie qui n’a pas d’équivalent dans les fluides classiques : l’origine de l’instabilité vient ici du couplage entre la rhéologie en forme de ‘S’ de la suspension et la déformation de la surface libre de l’écoulement.

Un autre exemple d’écoulement de suspension revisité à l’aune du modèle de la transition frictionnelle est l’écoulement d’une suspension rhéo-épaississante au travers d’une constriction,

voir figure 1.30b. En couplant le modèle de transition frictionnel au Suspension Balance Model [69], qui décrit le phénomène de migration induite par cisaillement, il est possible de prédire quantitativement la dilution de la suspension mesurée en sortie de constriction, voir figure 1.30b.

La rhéologie en forme de ‘S’ des suspensions rhéo-épaississantes tend, sous certaines conditions, à rendre les écoulements instables, et en effet la littérature récente regorge d’exemples d’instabilités, d’écoulements instationnaires et/ou inhomogènes que les chercheurs tentent de rationaliser. On peut citer par exemple l’observation de bandes de cisaillement observées en rhéomètre [70, 71], d’ondes de densité en cellule de Taylor-Couette ou en géométrie plan-plan [72, 73], d’instabilités inertielles en géométrie plan/plan [74], etc... Il y a donc une phénoménologie très riche que la compréhension récente du rhéo-épaississement permet à présent d’appréhender.

## 1.5 Motivations et problématique de la thèse

Cette introduction montre que d’importants progrès ont été effectués ces dernières années sur la compréhension du rhéo-épaississement des suspensions denses. Le modèle de Wyart & Cates (2014) décrit ce phénomène telle une transition frictionnelle induite par la présence d’une force répulsive entre les particules. Il est assez remarquable et fascinant de voir que, par rapport aux suspensions Newtoniennes classiques, la simple introduction d’une force répulsive et la dépendance de la fraction volumique de jamming au coefficient de friction inter-particules, induisent une si grande richesse de comportements. Ce modèle est en effet suffisant pour prédire les rhéogrammes complexes des suspensions rhéo-épaississantes, qui présentent des régimes de rhéo-épaississement continu, discontinu mais aussi ré-entrant. On peut aussi à présent, sur la base de ce modèle, proposer des solutions pour contrôler la rhéologie des suspensions en modifiant la nature des interactions entre particules, décrire d’autres comportements comme la rhéo-fluidification, ou prédire certaines instabilités d’écoulement. Les travaux actuelles sur ces thématiques foisonnent et de nombreux groupes de recherches en Suisse, en France, aux Etats Unis, couplant chimistes et physiciens, tentent de développer de nouvelles particules sur-mesure afin de conférer aux suspensions les propriétés rhéologiques désirées.

Pour comprendre le comportement rhéologique de ces suspensions et éventuellement améliorer leur formulation, on voit qu’il est crucial de pouvoir caractériser leur comportement frictionnel. Le problème est qu’il n’existe pas à l’heure actuelle d’outil rhéologique approprié permettant d’accéder au comportement frictionnel des suspensions colloïdales. Les techniques AFM classiques ou avancées, permettent de sonder le coefficient de friction de particules individuelles, mais la caractérisation complète *in situ* du comportement frictionnelle d’une suspension en écoulement reste inaccessible. Les techniques rhéologiques classiques, qui sont réalisées à fraction volumique imposée, fournissent des informations sur le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , la contrainte de cisaillement  $\tau$  et la viscosité  $\eta$  de la suspension, mais ne renseignent pas sur le comportement frictionnel de la suspension. Par ailleurs, le rhéomètre à pression imposée développé par Boyer et al. (2011) [20, 22] n’est fonctionnel que pour des suspensions de particules macroscopiques dont le diamètre  $d > 300 \mu\text{m}$ . On peut mentionner les configurations

tambour tournant [45] et le Darcytron [58], mais ces configurations ne permettent pas des mesures rhéologiques à proprement parler de part leur complexité (écoulement et pression inhomogène). De plus, elles ne fournissent que des mesures partielles du comportement frictionnelle limitées au régime quasi-statique ( $J \rightarrow 0$ ).

Il faut donc construire un nouveau rhéomètre à pression imposé capable de sonder la rhéologie frictionnelle des suspensions colloïdales : c'est l'objectif de ma thèse. Comment sonder la rhéologie d'une suspension granulaire, en contrôlant la pression exercée sur les grains, lorsque les grains sont aussi petits que ceux rencontrés dans les suspensions rhéo-épaississantes, c'est-à-dire de seulement quelques microns de diamètre ? Le concept du *Capillarytron*, que j'ai développé pendant ma thèse, découle d'une propriété intrinsèque des suspensions de particules, à savoir que sous cisaillement, les suspensions de particules sont dilatantes. Cela signifie que les suspensions cisillées développent spontanément, comme on l'a vu dans l'introduction, des contraintes normales  $P_p$ , qui ont tendance à déformer et corruguer l'interface capillaire air/suspension. Le concept du *Capillarytron* consiste à inverser cette situation, précisément en utilisant l'interface capillaire pour imposer la pression granulaire.

Le manuscrit est organisé comme suit : Je présente dans le chapitre 2 le concept du *Capillarytron* et explique les différents protocoles de mesures. Le chapitre suivant est dédié à la preuve de concept du *Capillarytron* en sondant la rhéologie frictionnelle d'une suspension classique de particules de diamètre ( $d \approx 120 \mu\text{m}$ ) dont la rhéologie frictionnelle est bien connue. Dans le chapitre 4, on utilise le *Capillarytron* afin de mettre en évidence la transition frictionnelle dans une suspension modèle de billes de silice de diamètre  $d \approx 25 \mu\text{m}$  immergées dans diverses solutions ioniques, puis on présente l'étude du comportement frictionnel de plusieurs suspensions colloïdales. Enfin, le dernier chapitre permet de conclure et de proposer des perspectives. Les perspectives envisagées sont d'une part des évolutions du dispositif, et d'autre part une sélection de systèmes dont l'étude permettrait de mettre en évidence des signatures frictionnelles intéressantes, et d'explorer ainsi les capacités du *Capillarytron*.

---

## Le Capillarytron : un nouveau rhéomètre à pression imposée

---

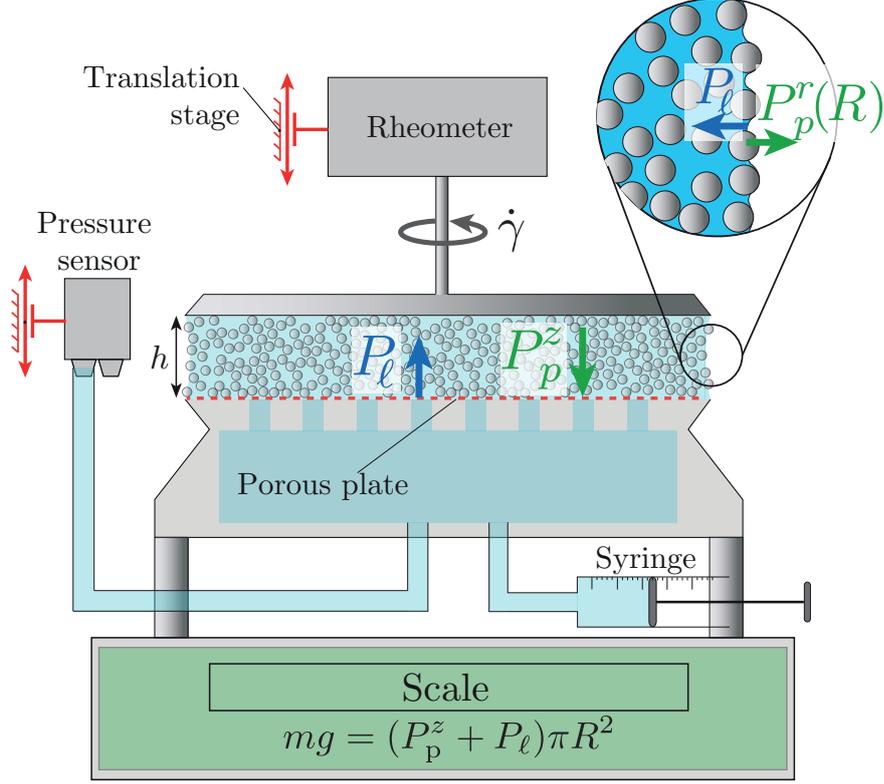
L'idée principale du Capillarytron est d'utiliser l'interface capillaire air/suspension afin d'imposer la pression sur la phase granulaire. Basé sur un nouveau concept en rhéométrie, nous allons voir que ce rhéomètre donne la possibilité d'accéder à la rhéologie frictionnelle des suspensions composées de particules de très petites tailles. Ce chapitre est dédié à la description du principe de fonctionnement du Capillarytron, que j'ai entièrement développé pendant ma thèse.

### 2.1 Le Capillarytron : principe de fonctionnement

Le capillarytron peut être utilisé dans les configurations *volume imposé* ou *pression imposée*, que je présente successivement dans la suite.

Ce rhéomètre est basé sur une configuration classique plan/plan où la suspension est cisailée entre deux disques de rayon  $R = 25$  mm, espacés d'un gap variable de hauteur  $h$ , cf. figure 2.1. Le plan supérieur est entraîné en rotation par une tête de rhéomètre Anton Paar DSR 502 qui permet de contrôler sa vitesse de rotation  $n$  et de mesurer le couple cisailant  $\Gamma$ . L'originalité de ce dispositif est que le plan inférieur est poreux. Constitué d'une grille rigide couverte d'un fin tamis de maille plus petite que le diamètre des particules, le plan inférieur poreux est perméable au fluide suspendant mais imperméable aux particules. Le bord de chacun des plans est usiné biseauté afin de maximiser la stabilité de l'interface air/suspension. Par ailleurs, un capteur de pression différentiel (Honeywell  $\pm 300$  Pa) permet de mesurer la pression du liquide  $P_\ell$ . L'altitude du capteur de pression, monté sur une platine de translation micrométrique, est ajusté de manière à compenser exactement la pression due à la pression hydrostatique et à la courbure du ménisque air/suspension lorsque la suspension est au repos ( $\dot{\gamma} = 0$ ). Lorsque la suspension est cisailée, les contraintes normales granulaires corrugent l'interface capillaire air/suspension. A l'état stationnaire, l'équilibre des contraintes normales radiales à cette interface s'écrit

$$P_p^r(r = R) + P_\ell = 0, \quad (2.1)$$


 FIGURE 2.1 – Schéma de principe du Capillarytron dans sa configuration *Volume imposé*.

où  $P_p^r(r = R)$  est la pression granulaire dans la direction radiale en  $r = R$ . Ainsi, les contraintes granulaires radiales, en déformant l'interface capillaire à l'échelle de la taille des grains (on parle de corrugation), induisent une pression négative  $P_l = -P_p^r(r = R)$  au sein du liquide suspendant.

### 2.1.1 Configuration volume imposé

La deuxième particularité de ce dispositif est que l'ensemble du plan inférieur repose sur une balance, précise au centième de gramme (Metler Toledo), qui est utilisée comme capteur de force. De même que pour le capteur de pression, la balance est initialement tarée alors que la suspension est au repos. De la sorte, on s'affranchit des effets du poids de l'échantillon et de l'effet de la pression du liquide dû au ménisque air/suspension. La balance donne ainsi accès à la résultante des forces dynamiques (induites par la mise en écoulement de la suspension) dans la direction verticale, i.e. celles résultant de la pression granulaire dans la direction verticale et de la pression du fluide due à la corrugation de l'interface capillaire. On obtient

$$mg = \pi R^2 (P_l + \bar{P}_p^z), \quad (2.2)$$

où  $m$  est la masse affichée par la balance,  $g$  est l'accélération de la pesanteur et  $\bar{P}_p^z$  la pression granulaire moyenne dans la direction verticale  $z$ . Ainsi, de manière similaire à l'étude expérimentale de Dbouk et al. 2013 [21], la mesure de la contrainte totale (ici donnée par

la masse), combinée à la mesure de la pression fluide, donne accès à la pression granulaire moyenne,  $\bar{P}_p^z = mg/\pi R^2 - P_\ell$ , qui correspond à la pression granulaire dans la direction du gradient vertical de vitesse que nous avons introduite au premier chapitre :  $\bar{P}_p^z \equiv P_p$ . Pour une expérience réalisée à une fraction volumique  $\phi$  donnée, le dispositif permet ainsi de mesurer le coefficient de friction macroscopique de la suspension  $\mu$  et le nombre visqueux  $J$  selon

$$\mu = \frac{\tau}{P_p}, \text{ et } J = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{P_p}, \quad (2.3)$$

où la contrainte de cisaillement  $\tau = 4\Gamma/3\pi R^3$  et le taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 4\pi nR/3h$ <sup>1</sup>. On accède aussi aux viscosités de cisaillement  $\eta_s$  et normale  $\eta_n$  adimensionnées de la suspension selon

$$\eta_s = \frac{\tau}{\eta_f \dot{\gamma}}, \text{ et } \eta_n = \frac{P_p}{\eta_f \dot{\gamma}}. \quad (2.4)$$

En réalisant des mesures à différentes fractions volumiques, le Capillarytron en mode volume imposé donne donc accès à l'ensemble des lois constitutives qui caractérisent la suspension, aussi bien celles données par le cadre *Volume imposé* :  $\tau = \eta_f \eta_s(\phi) \dot{\gamma}$  et  $P_p = \eta_f \eta_n(\phi) \dot{\gamma}$ , que *Pression imposée* :  $\tau = \mu(J) P_p$  et  $\phi = \phi(J)$ . Un second avantage expérimental très pratique offert par le Capillarytron est que l'échantillon peut être connecté, via le plan poreux, à une seringue externe, cf. figure 2.1. Il est donc possible de placer un échantillon initial à une fraction volumique relativement basse, ce qui est facile car la suspension est relativement liquide. Et ensuite, entre chaque mesure, on peut augmenter sa fraction volumique directement en soutirant du fluide grâce à la seringue. On verra par la suite que le Capillarytron donne ainsi la possibilité d'explorer la rhéologie des suspensions à des fractions volumiques bien plus grandes que ne le permettent les rhéomètres commerciaux.

Il est important de mentionner que, comme de façon usuelle en rhéologie plan/plan, les lois rhéologiques extraites caractérisent les grandeurs rhéologiques moyennes et ne tiennent pas compte de la dépendance radiale des contraintes et du taux de cisaillement. On discutera plus en détail l'effet de prendre en compte la non-uniformité du taux de cisaillement dans la section 2.3.1. Par ailleurs, le lecteur est en droit de se demander si dans l'équation 2.1 qui décrit l'équilibre des contraintes à l'interface, il ne manque pas un terme due à la courbure globale du ménisque du type  $2\gamma \cos \theta/h$ , où  $\gamma$  est la tension de surface et  $\theta$  l'angle de mouillage de la suspension sur le bord des plateaux. Ce terme est en fait pris en compte, comme expliqué plus haut, dans la référence de pression du capteur de pression et sa valeur est constante lorsque la suspension est mise en écoulement car l'expérience est ici effectuée à volume imposé. On verra plus tard, dans la configuration pression imposée, que la variation du volume de l'échantillon peuvent induire une variation de la courbure globale du ménisque, qu'il faudra prendre en compte. Un dernier point est que le Capillarytron donne ici accès à la pression granulaire dans la direction verticale  $z$  avec  $\bar{P}_p^z = mg/\pi R^2 - P_\ell$ , mais aussi à celle dans la direction radiale, car  $P_p^r(r = R) = -P_\ell$ . En faisant l'hypothèse que les contraintes, comme le taux de cisaillement, sont des fonctions linéaires de  $r$ , on a  $\bar{P}_p^r = 2P_p^r(r = R)/3 = -2P_\ell/3$

1. On fait ici l'hypothèse qu'en géométrie plan-plan le profil radial de vitesse est linéaire ainsi que le profil de contrainte tangentielle. Nous discutons plus en détail ces points à la fin du chapitre, dans la section 2.3.1.

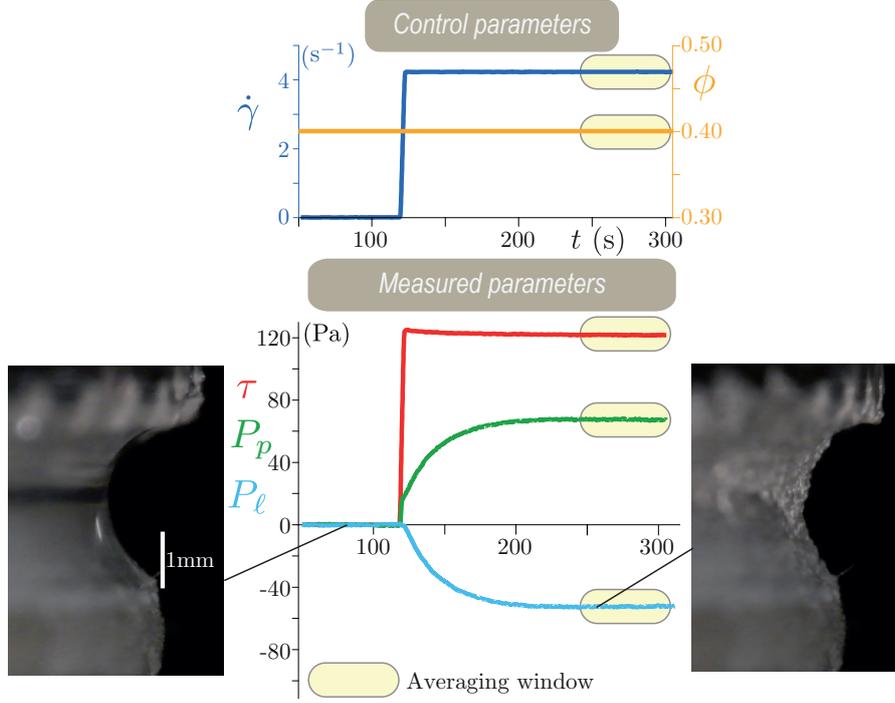


FIGURE 2.2 – Mesure type à volume imposé. Paramètre de contrôles : taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et fraction volumique  $\phi$ . Paramètres mesurés : contrainte de cisaillement  $\tau$ , pression du liquide  $P_\ell$ . La contrainte granulaire verticale  $P_p$  est obtenue via l’equ. 2.2. Les images illustrent la forme et l’état de corrugation du ménisque lorsque la suspension est au repos et cisailée.

(cf. section 2.3.1), qui donne accès à  $\lambda_2/\lambda_3 = P_p^z/P_p^r$  le rapport d’anisotropie des contraintes granulaires entre la direction normale et celle de la vorticit e.

### 2.1.2 Mesure type et protocole  a volume impos e

La figure 2.2 illustre une mesure typique faite  a volume impos e avec une suspension de particules de PMMA ( $d \approx 150 \mu\text{m}$ ) immerg ees dans une fluide visqueux et Newtonien de fraction volumique  $\phi = 0.40$ . La mesure commence au repos ( $\dot{\gamma} = 0$ ) et les r ef erences de pression et de masse sont effectu ees de mani ere que  $P_\ell(t = 0) = 0$  et  $m(t = 0) = 0$ . Dans ces conditions, la contrainte de cisaillement  $\tau$  et la pression granulaire  $P_p$  sont  egalement nulles. On observe que, pour cette condition initiale de r ef erence, l’interface air/suspension est tr es lisse. En augmentant le taux de cisaillement de la suspension jusqu’ a une valeur finie, la contrainte de cisaillement augmente et la suspension dilatante d eveloppe des contraintes granulaires positives qui corrugent l’interface air/suspension. En cons equence, la pression liquide  $P_\ell$   a l’int erieur de l’ echantillon devient n egative. Une fois l’ etat stationnaire atteint, les signaux peuvent ˆetre moyenn es temporellement afin d’augmenter la pr ecision sur la mesure des quantit es rh eologiques d’int erˆets : les viscosit es de cisaillement  $\eta_s(\phi)$  et normale  $\eta_n(\phi)$ , et la rh eologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$ . Typiquement, l’ element limitant sur la pr ecision des mesures est le capteur de pression, dont la pr ecision est d’environ  $\pm 1$  Pa. La balance au centi eme de gramme assure elle une pr ecision sur la contrainte totale d’environ  $\pm 0.05$  Pa. Le d etail du protocole de mesure sur lequel on a converg e est donn e dans l’encadr e suivant.

### Protocole de mesure à *volume imposé*

- 1) La suspension préparée à  $\phi = 0.4$  est placée dans l'entrefer sans introduire de bulle d'air.
- 2) On règle l'entrefer  $h$  de manière à ajuster le ménisque relativement droit.
- 3) La suspension est d'abord pré-cisaillée à taux de cisaillement constant pour une déformation  $\dot{\gamma}t > 10$ , et on vérifie que l'ensemble des signaux soit bien stationnaire.
- 4) La suspension au repos, on ajuste la position verticale du capteur de pression tel que  $P_\ell = 0$ , et de façon concomitante, on tare la balance.
- 5) L'enregistrement des signaux est démarré 30 s avant le lancement du taux de cisaillement, afin de mesurer avec précision les valeurs de référence des signaux de pression et de masse.
- 6) Une fois l'état stationnaire atteint, les signaux sont enregistrés pendant typiquement 200 s, puis on arrête l'enregistrement.
- 7) Pour la prochaine mesure, la fraction volumique  $\phi$  peut être augmenté en soutirant la quantité désirée de fluide à l'aide de la seringue précise au centième de mL. Cette opération se fait lentement, tout en cisaillant la suspension afin d'éviter de créer une zone plus dense au niveau du poreux. On ajuste pendant cette opération l'entrefer  $h$  pour compenser le volume de fluide soutiré.
- 8) On reprend à l'étape 3).

\* \* \*

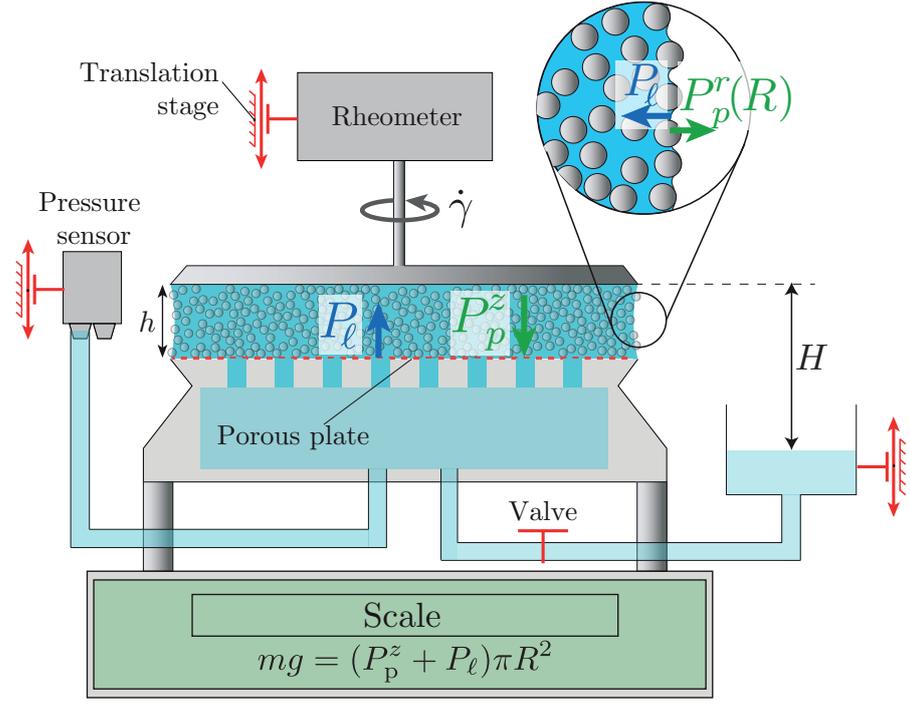
On a vu ci-dessus que le Capillarytron, dans sa *version volume imposé*, donne accès à toutes les quantités qui caractérisant la rhéologie de la suspension en fournissant  $\eta_s(\phi)$  et  $\eta_n(\phi)$ , mais aussi sa rhéologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$ . Pourquoi a-t-on alors besoin d'une configuration *pression imposée*? La motivation principale vient de la nature des suspensions rhéo-épaississantes dont la rhéologie, comme on l'a vue dans l'introduction, dépend des paramètres sans dimensions  $J$  et  $P_p/P^*$ , où  $P^*$  est la pression de répulsion critique due aux forces répulsives entre particules. Contrôler la pression granulaire  $P_p$  est alors indispensable si l'on veut pouvoir varier indépendamment ces deux paramètres. On verra aussi que la configuration *pression imposée* ouvre la possibilité d'effectuer des mesures dites 'dynamiques' permettant de caractériser la rhéologie de la suspension sur une très large gamme de  $J$  (et donc de  $\phi$ ) en une seule rampe.

### 2.1.3 Configuration à pression imposée

Le capillarytron dans sa version *Pression imposée* est représenté sur la figure 2.3. La seule différence par rapport à la version précédente est que la seringue est remplacée par un réservoir de fluide de hauteur  $H$  ajustable, qui fixe la pression du liquide dans l'échantillon à  $P_\ell = -\rho_f g H$ , où  $\rho_f$  est la masse volumique du fluide. Dans cette configuration, sous cisaillement la fraction volumique  $\phi$  de la suspension s'adapte de manière à satisfaire l'équilibre des contraintes

$$P_p^r(r = R) = \rho_f g H, \quad (2.5)$$

au niveau de l'interface capillaire. La pression hydrostatique  $\rho_f g H$  imposée 'tire' l'interface capillaire vers l'intérieur de l'échantillon, mais celle-ci est retenue par la pression granulaire dans la direction radiale : c'est donc *l'interface capillaire* qui permet d'imposer la pression


 FIGURE 2.3 – Schéma de principe du Capillarytron en mode *Pression imposée*.

granulaire. Plusieurs remarques sont ici nécessaires pour bien comprendre le fonctionnement du Capillarytron dans sa version pression imposée :

i) L'équation 2.5 ne s'applique que si le ménisque air/suspension est droit et à la position  $r = R$ . Ici, les variations possibles de la fraction volumique de la suspension induisent une variation du volume de l'échantillon qui résulte en une courbure globale du ménisque air/suspension. L'équilibre des contraintes à l'interface air/suspension fait alors intervenir un terme capillaire supplémentaire

$$P_p^r(r = R) = \rho_f g H - \frac{2\gamma \cos \theta}{h}. \quad (2.6)$$

Le fait que le ménisque puisse se courber légèrement, relativement à la référence de pression faite initialement sur le capteur de pression, n'est cependant pas gênant du point de vue de la mesure. En effet le terme capillaire supplémentaire ne fait que moduler la pression granulaire  $P_p^r(r = R)$  par rapport au terme dominant qui est la pression hydrostatique  $\rho_f g H$ . De plus, la pression granulaire dans la direction verticale, nécessaire pour établir la rhéologie frictionnelle de la suspension, est directement et correctement mesurée en utilisant l'équation 2.2, i.e.  $P_p^z = mg/\pi R^2 - \rho_f g H$ , qui reste inchangé en présence ou non d'une courbure du ménisque.

ii) En pratique, lorsque la fraction volumique varie, le ménisque est maintenu droit et à la position  $r = R$  en faisant varier l'entrefer  $h$ , grâce à la table de translation micrométrique (PI translation stage) qui porte la tête du rhéomètre tout en visualisant le ménisque grâce à une caméra à fort grossissement imageant les bords de plateau du rhéomètre. Maintenir le ménisque droit et à la position  $r = R$ , permet de mesurer l'évolution de la fraction volumique

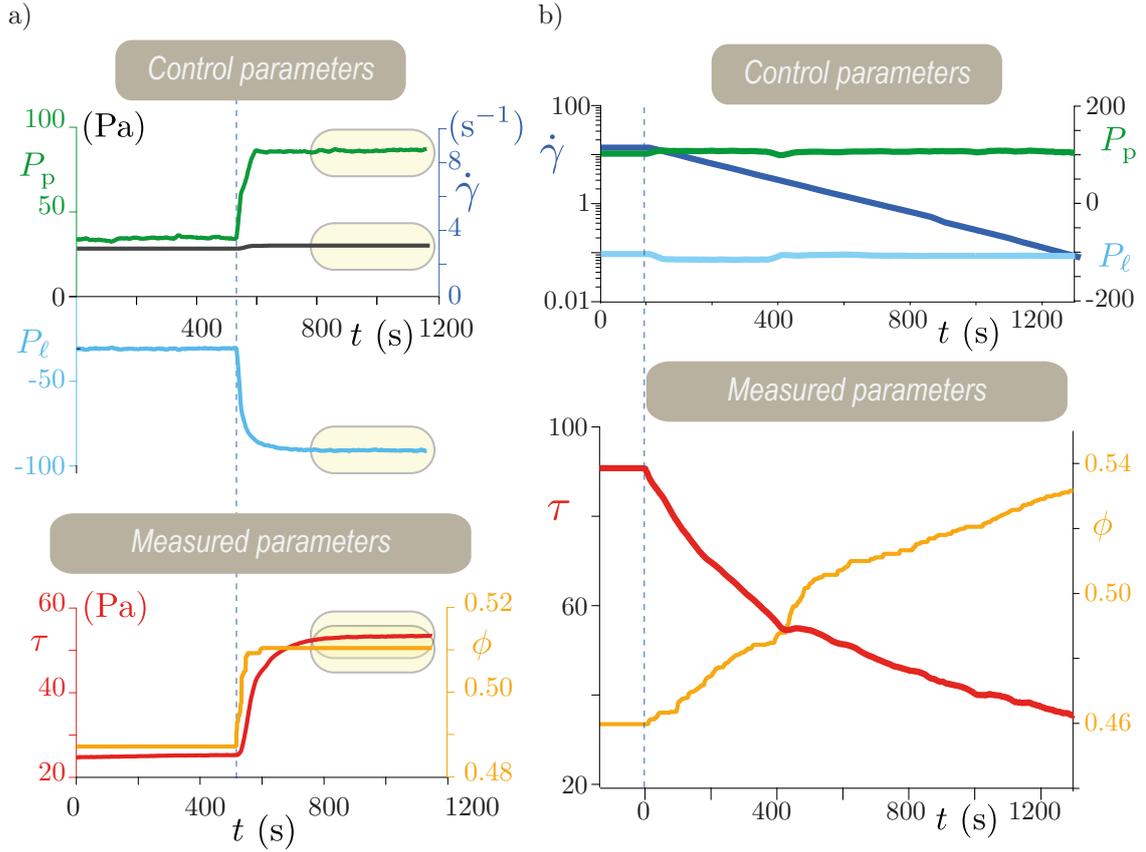


FIGURE 2.4 – Mesures types à pression imposée. a) Mesure stationnaire : à partir d’un état initial stationnaire, on modifie la pression granulaire en variant  $H$  à taux de cisaillement fixé, b) Mesure dynamique : à partir d’un état initial stationnaire, on impose une rampe décroissante de taux de cisaillement à pression granulaire fixé. *Paramètres de contrôle* : taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , pression du liquide  $P_\ell$  et pression granulaire  $P_p$ . *Paramètres mesurés* : contrainte de cisaillement  $\tau$ , fraction volumique  $\phi$ .

de la suspension car  $\phi = V_p/\pi R^2 h$ , où  $V_p$  est le volume des particules.

iii) Comme c’est l’interface capillaire qui impose la pression granulaire, contrairement au rhéomètre de Boyer et al. (2011) [20] qui utilise une grille mobile, il n’y a pas ici de limite de taille des particules ! Au contraire, plus les particules sont petites, plus il est possible d’imposer une pression importante. La pression maximale que peut soutenir l’interface capillaire est  $P_{\max} \approx 10\gamma/d$ , où  $\gamma$  est la tension de surface du liquide suspendant et  $10/d$  correspond à la courbure maximale de l’interface, qui peut se loger au niveau des pores entre les particules. Par exemple, en prenant  $\gamma \simeq 70 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$  pour de l’eau, et des particules de diamètre  $d = 10 \mu\text{m}$ , on obtient  $P_{\max} \approx 7 \times 10^4 \text{ Pa}$ , soit l’équivalent d’une colonne d’eau de 7 m ! En pratique, les pressions imposées seront telles que  $P_\ell \in [5 - 1000] \text{ Pa}$ , soit  $H \in [0.5 - 100] \text{ mm}$ .

#### 2.1.4 Mesures types et protocoles à pression imposée

La figure 2.4 illustre les deux protocoles de mesures types réalisées avec le Capillarytron dans sa version pression imposée sur la même suspension que précédemment.

Dans le première protocole dit ‘stationnaire’, cf. figure 2.4a, la suspension initialement à

l'état stationnaire est soumise à un certain taux de cisaillement et à une pression fluide et donc une pression granulaire fixée par la hauteur initiale du réservoir. Lorsque la hauteur du réservoir est soudainement abaissée alors que la vitesse de rotation  $n$  reste constante, la pression fluide  $P_\ell$  diminue et la contrainte granulaire  $P_p$ , la contrainte de cisaillement  $\tau$  et la fraction volumique  $\phi$  augmentent jusqu'à atteindre un nouvel état stationnaire. Le taux de cisaillement augmente légèrement car l'entrefer  $h$  est ajusté pour maintenir le ménisque droit et à la position  $r = R$ , alors que la suspension se concentre. Comme précédemment, une fois l'état stationnaire atteint, les signaux peuvent être moyennés temporellement. Pour ce protocole, les courbes  $\eta_s(\phi)$ ,  $\eta_n(\phi)$ ,  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  sont ainsi construites point par point.

Avec le second protocole dit 'dynamique', il est possible de reconstruire l'ensemble de ces courbes sur une large gamme de  $J$  en une seule mesure. Ce protocole est illustré sur la figure 2.4b. La suspension est à nouveau préparée dans un état stationnaire initial pour un taux de cisaillement et une pression granulaire donnés. Cette fois, la pression fluide et granulaire sont maintenues constantes en gardant le réservoir à la même hauteur, mais on applique une rampe décroissante de taux de cisaillement très lente afin que le système puisse évoluer (se concentrer) de façon quasi-stationnaire. L'entrefer est également ajusté continuellement pour maintenir le ménisque droit pendant que la suspension se concentre. Dans cet exemple, puisque le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  diminue à pression granulaire  $P_p$  constante, le nombre visqueux  $J = \eta_f \dot{\gamma} / P_p$  diminue. On peut alors observer la diminution attendu de la contrainte de cisaillement  $\tau$  (car  $\mu = \tau / P_p$  diminue) et l'augmentation de la fraction volumique  $\phi$ . Ces mesures dynamiques doivent être effectués suffisamment lentement pour qu'à chaque instant le système satisfasse les équilibres de contraintes radial et vertical donnés par les équations 2.1 et 2.2. Typiquement la durée totale de la rampe est de 2000 s pour des particules de 120  $\mu\text{m}$ , mais peut être augmenté à 3000 s pour des particules plus petites et/ou des pressions appliquées plus faible, qui tendent à allonger la durée des transitoires nécessaires à la variation de la fraction volumique de la suspension. Ce protocole dynamique présente plusieurs avantages : i) Il est plus rapide que le protocole point par point. ii) Il tend à être plus précis car les références de pressions, de hauteurs et de masse ne sont faites qu'une fois en début d'expérience. iii) Il permet de faire varier  $J$  sur une large gamme tout en gardant  $P_p$  constant. Comme on le verra dans le chapitre 4 portant sur les suspensions rhéo-épaississantes, ce protocole 'dynamique' permettra de sonder indépendamment la branche non-frottante et frottante de ces suspensions.

### **Mesure de la contrainte granulaire radiale $P_p^r$ à pression imposée :**

Comme l'indique l'équation 2.6, la pression granulaire radiale peut être légèrement différente de la pression hydrostatique si la courbure du ménisque a évolué depuis la référence de pression initiale faite sur la capteur de pression. Pour palier à ce problème, lors du protocole de type *Mesure Stationnaire*, il est possible à la fin de la mesure, de simplement fermer le robinet et de stopper la rotation du rhéomètre (figure 2.5). La suspension est donc au repos, les contraintes granulaires relaxent et le capteur de pression du liquide ne mesure alors que la pression du liquide résiduelle due à la courbure du ménisque  $-2\gamma \cos\theta/h$ , qui est la même que celle de l'état stationnaire juste avant d'avoir fermé le robinet, puisque le volume l'échantillon n'a pas changé. On peut ainsi calculer la pression granulaire radiale pendant l'état stationnaire

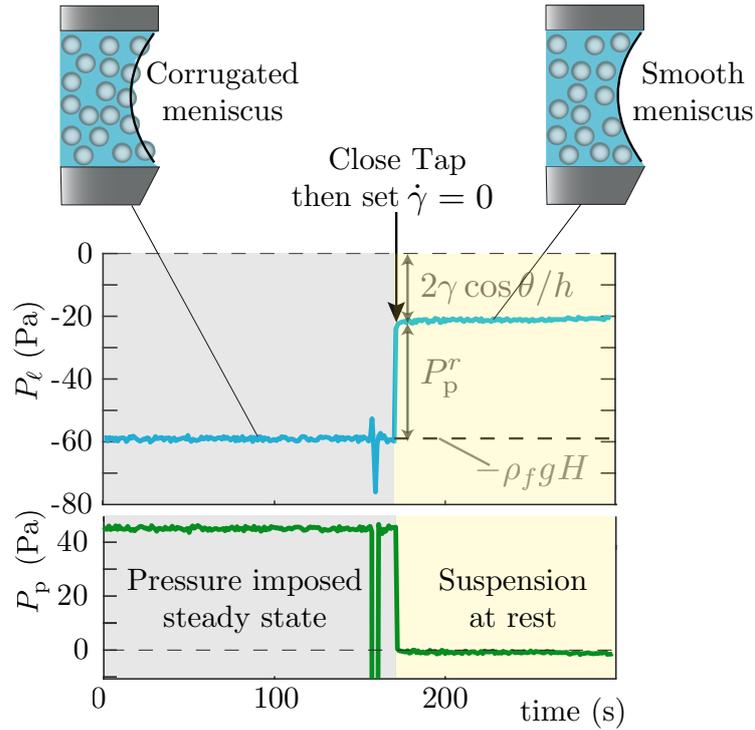


FIGURE 2.5 – Mesure de la contrainte granulaire radiale  $P_p^r$  en fin de mesure stationnaire à pression imposée : à la fin de la mesure, le robinet est fermé puis on stoppe la rotation. Les contraintes granulaires relaxent et la pression du liquide correspond à la pression du liquide résiduelle due à la courbure du ménisque  $-2\gamma \cos\theta/h$ . On peut alors en déduire la pression granulaire radiale pendant l'état stationnaire précédent la fermeture du robinet selon  $P_p^r(r = R) = \rho_f g H - 2\gamma \cos\theta/h$ .

précédent selon  $P_p^r(r = R) = \rho_f g H - 2\gamma \cos\theta/h$ . Cette astuce nous permet d'accéder à la contrainte granulaire radiale ce qui nous permettra d'étudier l'anisotropie des contraintes au sein de la suspension.

### Protocoles de mesures à *pression imposée*

#### 1) Préparation d'un état stationnaire initial

1. Le robinet fermé (volume imposé), la suspension initialement préparée à  $\phi_{\text{start}} \simeq 40\%$  est disposée dans l'entrefer comme à volume imposé.
2. On effectue les références de hauteur du réservoir, de masse sur la balance et de pression du liquide. Pour cela, on ouvre le robinet (pression imposée) qui connecte l'échantillon au réservoir et on ajuste la hauteur du réservoir  $H$  au niveau de l'échantillon afin que le réservoir et l'échantillon soit à l'équilibre hydrostatique avec un ménisque droit. On attend 30s, pour s'assurer qu'il n'y a plus de flux de liquide entre le réservoir et l'échantillon. On choisit cette hauteur de réservoir comme référence de hauteur pour  $H$  et, de façon concomitante, on tare la balance et on ajuste l'altitude du capteur de pression afin d'obtenir  $P_\ell = 0$ . Les références de hauteur, de masse et de pression du liquide sont faites.
3. On lance l'enregistrement et on attend 30 secondes pour mesurer les références de pression et de masse.
4. On lance ensuite une rampe montante de vitesse pendant laquelle on met progressivement la suspension sous pression en abaissant du réservoir  $H$ . Une fois arrivée à la vitesse désirée correspondant à l'état stationnaire initial, on ajuste finement  $H$  jusqu'à obtenir la pression granulaire  $P_p^z$  voulue. Si le ménisque de l'échantillon se courbe, car le volume de l'échantillon évolue, on ajuste la hauteur du gap  $h$  afin de maintenir le ménisque le plus droit possible et à la position  $r = R$ .
5. Une fois l'état stationnaire initial atteint, on peut commencer la mesure.

#### 2) Mesure stationnaire

1. Depuis cet état stationnaire initial, pour varier  $J$ , on peut soit varier la pression granulaire en modifiant  $H$ , soit varier le taux de cisaillement en changeant la vitesse de rotation  $n$ .
2. On laisse alors évoluer le système, cf. figure 2.4a, tout en ajustant l'entrefer  $h$  afin de maintenir le ménisque droit et à la position  $r = R$ , jusqu'à atteindre un nouvel état stationnaire pendant 200 s.
3. On ferme ensuite le robinet (volume imposé), puis on stoppe le cisaillement ce qui permet de mesurer la pression résiduelle du liquide due à la courbure finale du ménisque et donc d'en déduire  $P_p^r$  pendant l'état stationnaire précédent la fermeture du robinet.

#### 3) Mesure 'dynamique'

1. Depuis l'état stationnaire initial, on lance une rampe descendante (très lente) de vitesse de rotation  $n$ , à pression constante ( $H$  constant).
2. Pendant la rampe, le nombre visqueux  $J = \eta_f \dot{\gamma} / P_p^z$  diminue car le taux de cisaillement diminue à pression constante. Alors que la fraction volumique augmente progressivement, on diminue l'entrefer  $h$  afin de maintenir le ménisque le plus droit possible et à la position  $r = R$ . Typiquement, on diminue l'entrefer  $h$  par des pas de 0.1 à 1  $\mu\text{m}$ , ce qui ne perturbe pas significativement la mesure.

## 2.2 Le dispositif expérimental plus en détails

La figure 2.6 présente une photo de l'ensemble du Capillarytron qui a été monté lors de la thèse. Dans cette section, je présente en détail les différents éléments de ce dispositif, qui ont tous leur importance pour le bon fonctionnement du Capillarytron.

### 2.2.1 Plateau inférieur poreux

Le plateau inférieur est constitué de trois éléments empilés, avec de haut en bas : une plaque rigide en PMMA, percée à l'aide d'une découpeuse laser de trous ayant un diamètre d'environ 1 mm ; un filtre imperméable aux particules ; et un autre filtre de pas plus important servant à créer une rugosité et limiter le glissement des particules à la paroi. Les filtres utilisés pour les particules de diamètre  $d > 10 \mu\text{m}$  sont des maillages de nylon, que l'on découpe à la découpeuse laser, et les filtres utilisés pour les particules plus petites sont des filtres commerciaux en cellulose de la marque MF-Millipore®, que l'on découpe aussi à la découpeuse laser. La figure 2.7 présente une image de ces éléments.

La plaque rigide de PMMA sert de support pour le filtre. Son bord est biseauté afin de maximiser la stabilité du ménisque air/suspension. Un espace est usiné sur la plaque afin d'accueillir les filtres pour qu'ils ne dépassent pas du bord de la plaque une fois collés. Le premier filtre est collé avec de la résine epoxy, en déposant de petites quantités de résine entre les trous de la plaque rigide. On fait attention à ne pas translater le filtre une fois positionné pour ne pas boucher les pores du filtre. On s'assure qu'il y a de la résine sur tout le périmètre du filtre pour éviter les fuites, et que le filtre soit posé bien à plat. On colle ensuite de la même façon le second filtre, dont les trous sont plus grands et qui sert de rugosité. Après séchage de la résine, on remplit le réservoir et on fait couler du fluide à travers le filtre par le dessous afin de vérifier qu'il n'y a pas de fuite.

### 2.2.2 Alignement et parallélisme

Puisque nous utilisons un plateau inférieur 'fait maison' reposant sur une balance, l'alignement et le parallélisme entre les deux plateaux doit être réalisé. Le plateau poreux est monté sur la balance par trois vis montées sur des ressorts, voir figure 2.8. Cela permet d'ajuster le parallélisme entre le plateau poreux et le plateau supérieur. Les ressorts sont de raideur suffisamment grande pour ne pas être comprimés lorsque l'on cisaille la suspension. Le plateau supérieur est placé presque au contact du plateau inférieur et on visualise un écran blanc à travers l'espace entre les plateaux : on observe alors une fine bande lumineuse blanche qui correspond à l'espace entre les deux plateaux. On règle alors le parallélisme en agissant sur les vis par itérations successives et cela selon deux directions perpendiculaires. Nous avons aussi utilisé la technique employée pour aligner les plateaux d'imprimante 3D, qui consiste à positionner une cale en papier entre les deux plateaux et de régler les vis jusqu'à ce que la cale soit à la limite du coincement entre les deux plateaux. Faire cette opération en deux points dans des directions orthogonales permet aussi d'assurer un très bon parallélisme des plateaux.

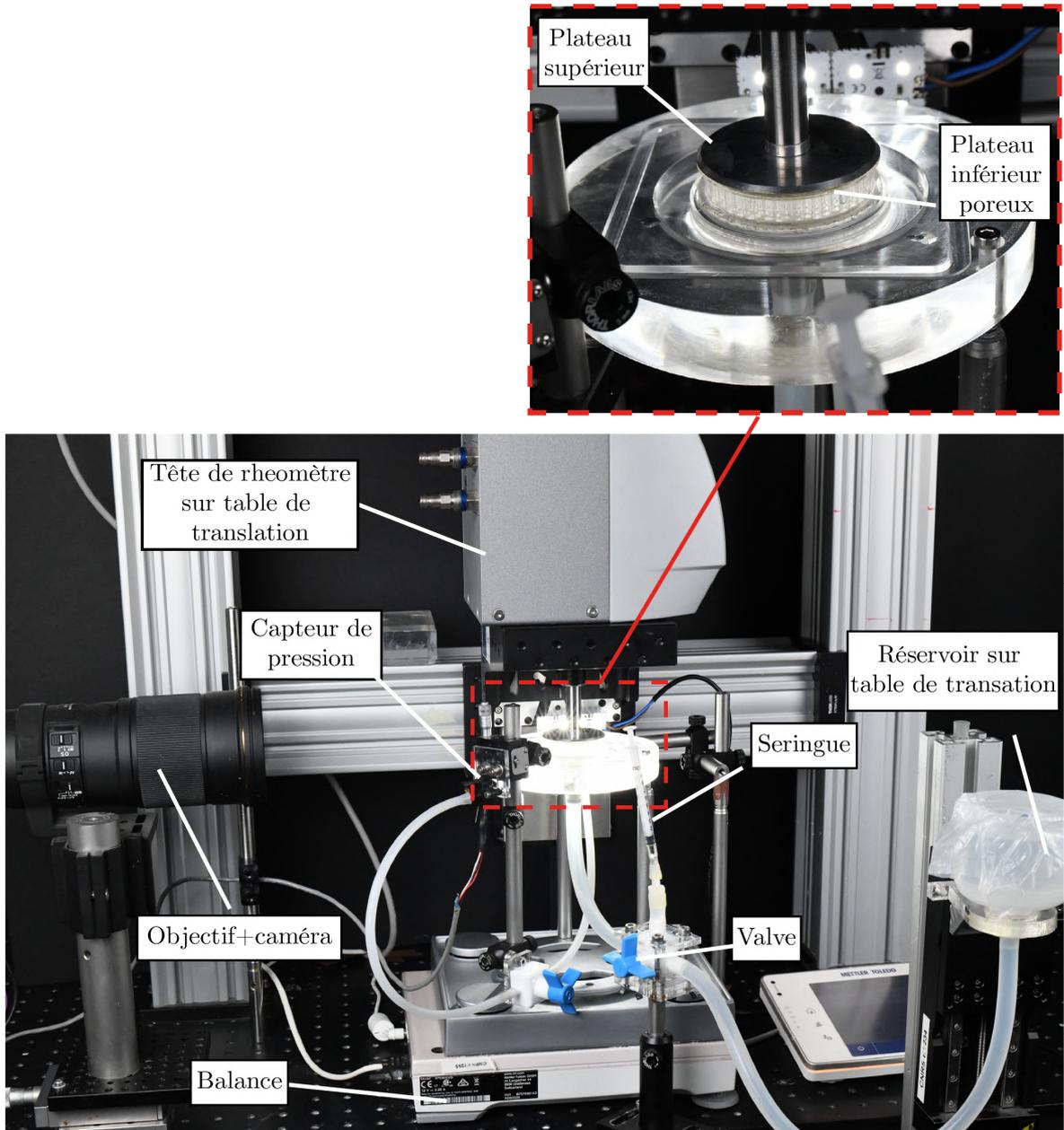


FIGURE 2.6 – Photo du dispositif expérimental. La valve permet à la fois de déconnecter le réservoir de l'échantillon lors de l'utilisation à pression imposée et de passer facilement du mode pression imposé (avec le réservoir) au mode volume imposé (avec la seringue).

### 2.2.3 Capteur de pression

Le capteur de pression différentiel (Honeywell  $\pm 300$  Pa) délivre une tension  $U = U_0 + k\Delta P$  qui est une fonction affine de la différence de pression  $\Delta P$  entre les deux entrées du capteur. La calibration est faite en mesurant la pression hydrostatique d'une colonne d'eau en connectant une des entrées du capteur à un réservoir d'eau de hauteur  $H$  ajustable, cf. figure 2.9. Cette calibration permet d'identifier la plage de mesure de notre capteur :  $P \in [-296; 309]$  Pa, ainsi que sa résolution, qui correspond au bruit de mesure sur la tension lorsque la pression est constante (hauteur  $H$  constante), divisée par le coefficient de calibration  $k$  :  $\delta P_\ell = \delta U/k \simeq \pm 1$

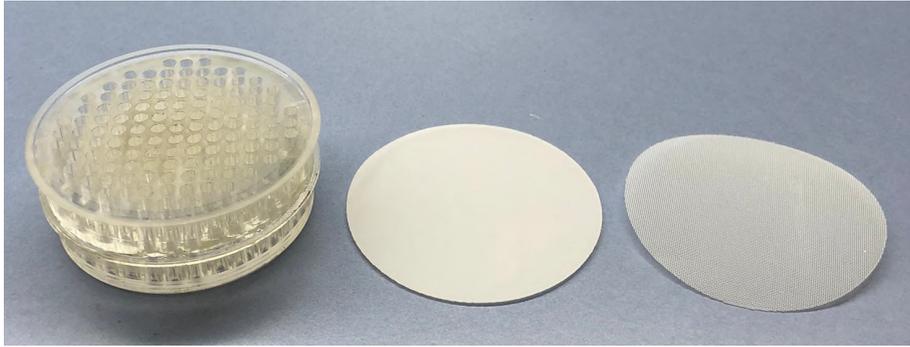


FIGURE 2.7 – Photo des éléments constituant le plateau inférieur poreux. Gauche : plaque rigide en PMMA percée, milieu : filtre en nylon de  $10\ \mu\text{m}$ , droite : filtre en nylon de  $220\ \mu\text{m}$  servant de rugosité.

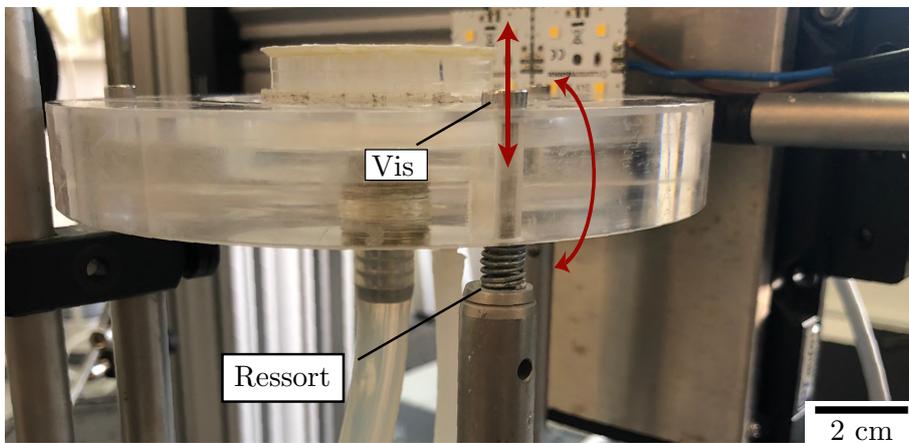


FIGURE 2.8 – Trois vis montés sur ressorts permettent d’ajuster le parallélisme du dispositif.

Pa.

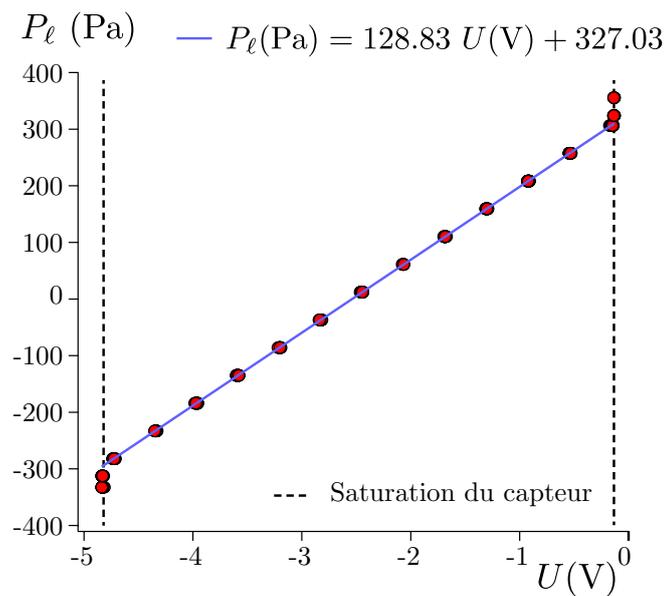


FIGURE 2.9 – Calibration du capteur de pression.

### 2.2.4 Acquisition des signaux

Le dispositif nécessite l'acquisition d'un grand nombre de signaux : le couple  $\Gamma$ , la vitesse de rotation du plan supérieur  $n$ , l'entrefer  $h$ , la hauteur du réservoir  $H$ , la pression du liquide  $P_\ell$  et la masse  $m$ , provenant de diverses sources : le rhéomètre, les deux platines de translations, le capteur de pression et la balance. Afin de traiter l'ensemble de ces signaux, l'ingénieur-électronicien du laboratoire, William Le Coz, a développé une interface graphique Labview, cf. figure 2.10. Cette interface nous permet de visualiser en temps réel, d'enregistrer et de regrouper tous ces signaux en un seul fichier. Elle permet également de piloter la table de translation verticale sur laquelle la tête de rhéomètre est montée afin d'ajuster l'entrefer  $h$ , ainsi que la table de translation sur laquelle est monté le réservoir afin d'ajuster la différence de hauteur d'eau  $H$ . Enfin, nous avons intégré une fenêtre permettant de visualiser l'échantillon avec une caméra à fort grossissement, ce qui est nécessaire pour visualiser le ménisque pendant l'expérience. J'ai collaboré avec l'ingénieur pour améliorer l'interface de contrôle. Nous avons travaillé sur l'échantillonnage pour réaliser une moyenne glissante et ainsi réduire le bruit de mesure. Nous avons également mis en place une mesure du couple  $\Gamma$  et de la vitesse de rotation  $n$  avec deux valeurs de gains différentes (dynamic-range measurement), qui nous permet de mesurer le couple et la vitesse sur une dynamique de 5 décades. Le rhéomètre est quand à lui piloté par le programme RheoCompass fourni par le constructeur Anton Paar.

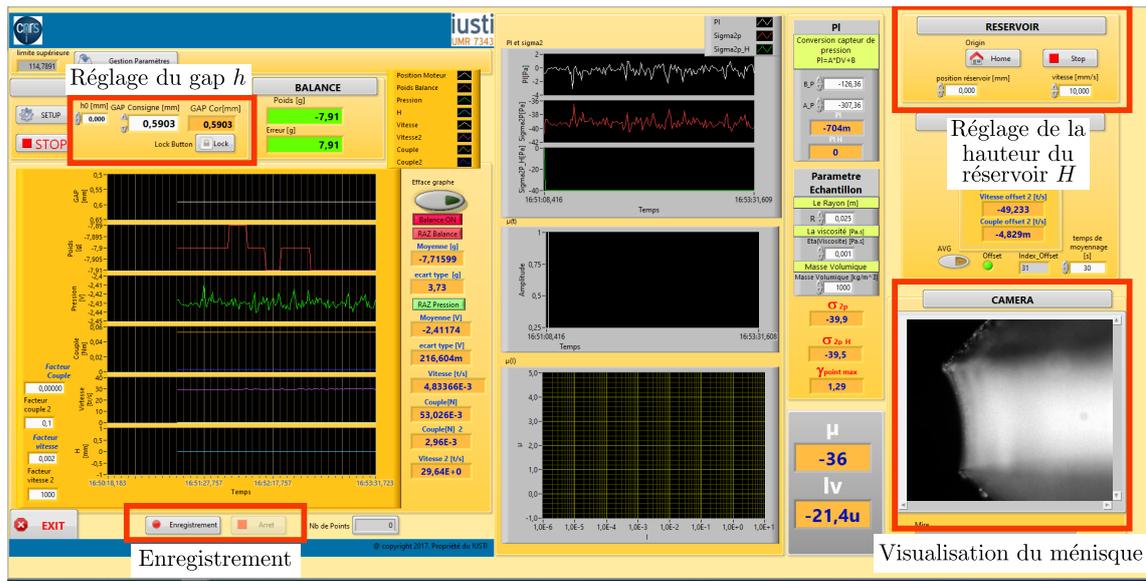


FIGURE 2.10 – Interface de contrôle sur LabView.

### 2.2.5 Table anti-vibration

L'ensemble du dispositif a du être monté sur une table anti-vibration (Thorlabs Optical table 600 kg) afin de minimiser les couplages mécaniques avec le sol. Cela a en particulier été nécessaire pour caractériser le comportement de la branche non-frottante des suspensions rhéo-épaississantes. En effet, pour effectuer ces mesures, il est nécessaire d'imposer des pressions granulaires  $P_p$  d'environ 5 Pa, soit l'équivalent de 0.5 mm d'eau, afin d'imposer une

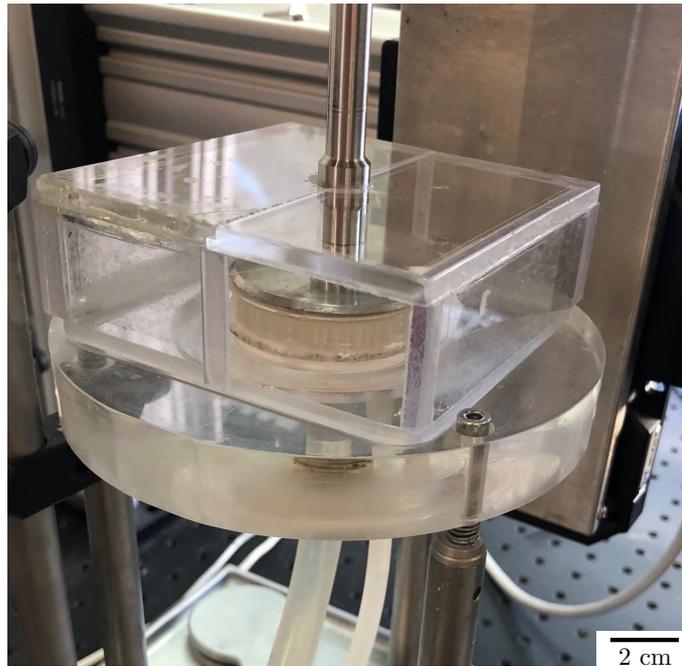


FIGURE 2.11 – Boîte anti-évaporation

pression inférieure à la pression de répulsion inter-particules. Toutes sources de bruit est alors à proscrire pour effectuer ces mesures très délicates.

### 2.2.6 Boîte anti-évaporation

Lors de l'utilisation de fluides suspendants aqueux, l'évaporation est un problème majeur, surtout avec le Capillarytron, car la moindre évaporation du fluide modifie l'angle de mouillage de la ligne contact qui induisent des dérives significatives des signaux de pression et de masse. Pour limiter ce phénomène, l'échantillon est couvert d'une boîte fermée, cf. figure 2.11, en plexiglass transparent, à l'intérieur de laquelle une gouttière est en permanence remplie d'eau afin de saturer d'humidité l'air ambiant à l'échantillon. Ce dispositif nous a permis de limiter l'évaporation, mais à volume imposé les mesures sont toujours très légèrement biaisées par ce phénomène. En revanche, la configuration pression imposée est très pratique de ce point de vue, car cette fois, l'échantillon étant connecté à un réservoir d'eau, l'évaporation n'entraîne plus de variation de l'angle de mouillage et les signaux sont ainsi beaucoup plus stables.

### 2.2.7 Visualisation optique des particules

Pour les expériences réalisées avec la suspension 'classique' de particules de PMMA de diamètre  $d \simeq 150 \mu\text{m}$ , nous avons souhaité pouvoir visualiser les particules pendant que la suspension est cisailée, afin de nous assurer notamment que la fraction volumique reste uniforme pendant la mesure. Pour cela, j'ai utilisé une suspension pour laquelle l'indice optique des particules et du fluide est identique (suspension iso-indice) et pour laquelle le fluide est coloré à l'aide d'un fluorophore (Rhodamine6G). On peut alors visualiser les particules à l'aide d'une nappe laser, ce qui est une méthode classique pour la visualisation des suspen-

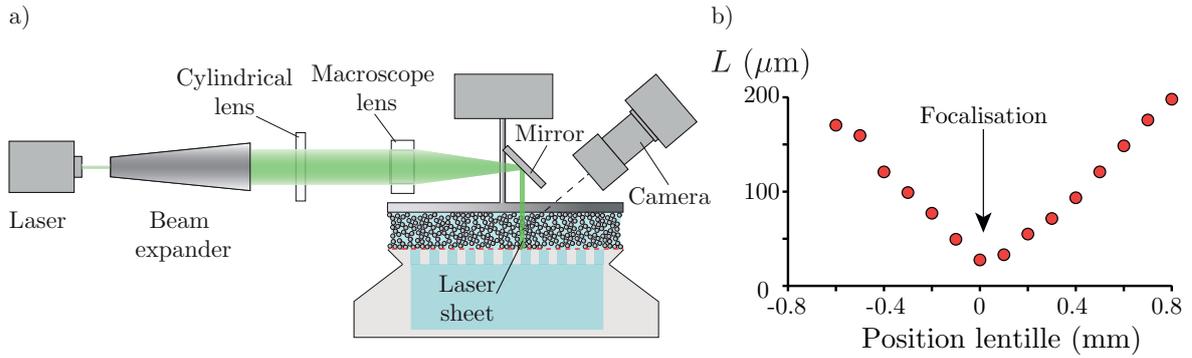


FIGURE 2.12 – a) Dispositif optique pour visualiser les particules de la suspension classique iso-indice (PMMA  $d = 150 \mu\text{m}$ ). b) Profil d'épaisseur de la nappe laser. L'épaisseur minimum est de  $L = (27.5 \pm 0.5) \mu\text{m}$ .

sions [75–77]. Je présente dans la suite le dispositif optique utilisé, la confection du plateau supérieur permettant la visualisation des particules pendant l'écoulement, et enfin le protocole de préparation de la suspension.

### Dispositif optique

Afin de pouvoir visualiser nettement les particules avec une nappe laser, il est nécessaire que l'épaisseur  $L$  de la nappe laser soit petite devant le diamètre  $d$  des particules. Or une nappe laser classique, réalisée avec seulement une lentille cylindrique a en général une épaisseur  $L \approx 500 \mu\text{m}$ . Nous avons donc monté un dispositif optique dédié comprenant : un laser, un extenseur de faisceau, une lentille cylindrique et enfin un objectif de microscope X1 (Leica Z16), cf. figure 2.12a. Un tel dispositif permet de réaliser une nappe laser d'autant plus fine que le diamètre  $D$  du faisceau après expansion est grand, et que la focale de l'objectif est courte, cf [78]. J'ai pu caractériser le profil d'épaisseur de la nappe, cf. figure 2.12.b, qui indique en effet que nous avons obtenu une nappe laser d'épaisseur  $L = (27.5 \pm 0.5) \mu\text{m}$ , ce qui s'est révélé suffisamment fin pour imager les particules. La nappe laser est ensuite projetée au travers du plateau du rhéomètre à l'aide d'un miroir à  $90^\circ$ , de telle sorte que la nappe soit verticale et orientée dans la direction radiale de la configuration plan/plan. Une caméra est focalisée sur la nappe pour observer les particules pendant l'écoulement au travers du plateau, et au travers d'un filtre passe-haut permettant de ne récolter sur la caméra que la lumière issue de la fluorescence du fluide.

La visualisation des particules nous a permis de vérifier qu'il n'y a pas de migration significative des particules pendant l'expérience, comme attendu dans une géométrie plan/plan [79]. Cela nous a aussi permis de remarquer que, lorsque l'on fait varier la fraction volumique de la suspension en soutirant du fluide avec la seringue, les particules ont tendance à se concentrer près du plateau poreux. Pour éviter ce problème, il suffit de continuer à cisailier la suspension pendant qu'on soutire le fluide. La suspension reste alors bien homogène.

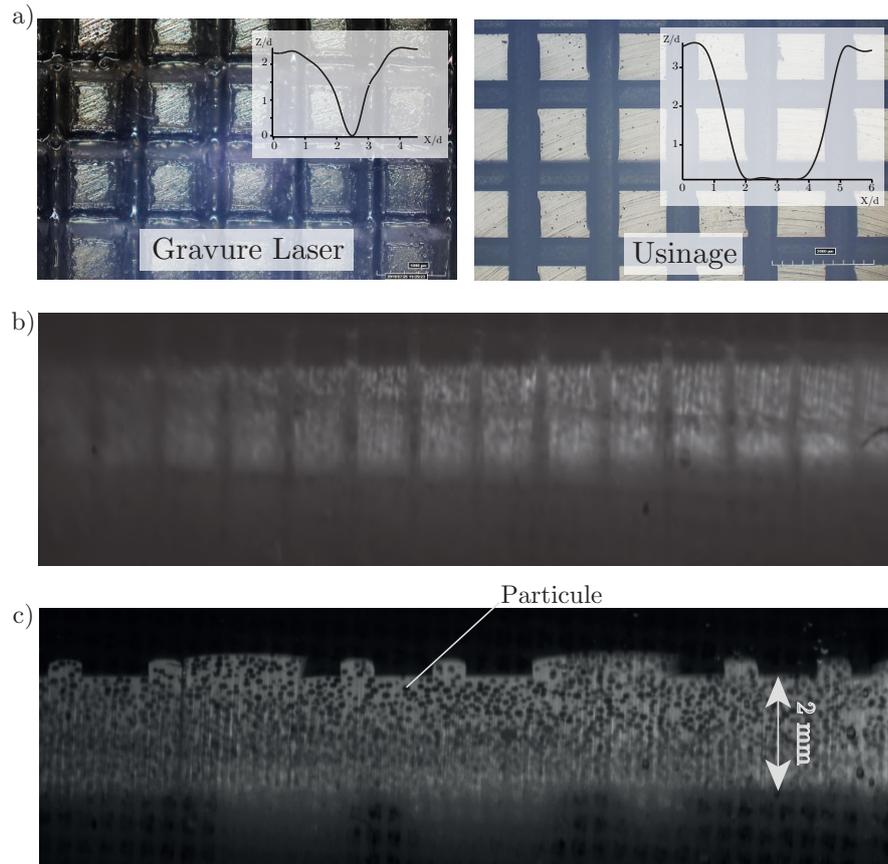


FIGURE 2.13 – a) comparaison des rugosités obtenues par gravure laser et par usinage sur fraiseuse numérique. Insets : profils des rugosités mesurées par microscopie 3D. Visualisation de la suspension obtenues b) par gravure laser : l’image est floue à cause des bulles d’air emprisonnées, c) par usinage : on peut distinguer les particules individuellement.

### Plateau mobile rugueux et transparent

Le plan supérieur de la cellule doit satisfaire deux contraintes difficiles à concilier : il doit être transparent pour permettre la visualisation, cf. figure 2.12, et en même temps rugueux pour éviter le glissement des particules à la paroi. Pour satisfaire ces deux contraintes, nous avons fait usiner un plateau en PMMA (le même matériau que les billes), afin qu’il soit de même indice optique que la suspension. Puis nous avons tenté de le rendre rugueux par plusieurs méthodes. Nous avons d’abord entrepris de réaliser la rugosité du plateau à l’aide d’une découpeuse laser en mode *gravure*. Le problème principal de cette méthode est qu’en chauffant le PMMA, le laser emprisonne des bulles d’air dans la matière qui rendent les visualisations de mauvaise qualité : on voit apparaître des zones d’ombres au niveau des zones gravées cf. 2.13b. Après de nombreux essais, nous avons alors opté pour usinage par fraiseuse numérique qui permet de réaliser la rugosité, tout en conservant une bonne transparence du plateau. Le résultat final est illustré sur la figure 2.13c où l’on peut observer les particules distinctement en noir dans le plan de la nappe laser.

### Préparation de la suspension pour les visualisations

La suspension utilisée pour effectuer les visualisations est composée de particule de Poly-methyl methacrylate (PMMA), de diamètre  $d \simeq 150 \mu\text{m}$ , et de densité  $\rho = 1.19 \text{ kg.m}^{-3}$ . Les billes ont été triées par passage dans des tamis de mailles [160-80]  $\mu\text{m}$ , lavées à l'eau distillée puis séchées. Le fluide suspendant est Newtonien et composé d'un mélange de Tritton X 100 à 73,35%, de  $\text{ZnCl}_2$  à 14,24% et d'eau à 11,9%, qui est une mixture classique pour obtenir une suspension iso-indice et iso-dense avec le PMMA [77].

La préparation de cette mixture doit suivre un protocole strict :

#### Mixture iso-indice et iso-dense

- 1) Dissoudre le  $\text{ZnCl}_2$  dans l'eau. La réaction de dissolution est exothermique et donc provoque l'évaporation d'une certaine quantité d'eau. Attendre le refroidissement à température ambiante et re-ajouter la quantité d'eau évaporée.
- 2) Ajouter quelques gouttes d'acide chlorhydrique pur afin de faciliter la dissolution du  $\text{ZnCl}_2$ .
- 3) Ensuite, verser (très!) lentement le Tritton sur la paroi du bécher tout en remuant la solution. Attention le début de la dissolution du Tritton est critique, si cette opération est effectuée trop rapidement, la mixture tourne en mayonnaise de façon irréversible!
- 4) Une fois tout le Tritton ajouté et bien mélangé, passer la solution à la pompe à vide pour extraire les bulles d'air.
- 5) Ajouter la rhodamine ( $\approx 10^{-6} \text{ g/mL}$ ) qui sert de fluorophore pour la visualisation, tout en mélangeant.

On obtient ainsi un fluide de densité  $\rho_f = \rho = 1.19 \text{ kg.m}^{-3}$ , d'indice optique  $n = 1.49$ , et de viscosité  $\eta = (2.99 \pm 0.03) \text{ Pa}$ . Le nombre de Reynolds maximal atteint sera de  $Re_{\max} = \rho R \Omega_{\max} h / \eta = 0.01 \ll 1$ , où  $\Omega_{\max} / 2\pi = 0.1 \text{ tour/s}$  est la vitesse de rotation maximale utilisée.

Pour préparer une suspension dense et éviter la présence de bulle d'air, on suit le protocole suivant :

#### Une suspension sans bulles d'air

- 1) Le fluide est d'abord placé dans un bécher.
- 2) On saupoudre ensuite la totalité des particules à la surface du fluide.
- 3) On attend!.. que par capillarité le fluide mouille la totalité des particules. Cette remonté capillaire chasse la totalité de l'air présent entre les grains.
- 4) On peut ensuite mélanger, sans introduire de touillette, mais en faisant tourner le bécher sur lui-même incliné à  $45^\circ$ .

## 2.3 Que mesure-t-on vraiment ?

Comme évoqué plus haut, en géométrie plan/plan, les grandeurs rhéologiques locales  $\tau$ ,  $\dot{\gamma}$ ,  $P_p^r$  et  $P_p^z$  dépendent linéairement de la position radiale  $r$ . Dans la suite, je détaille les

calculs qui permettent d'accéder aux grandeurs moyennes utilisées pour définir les lois rhéologiques. Je discute aussi des différences de contraintes normales, grandeurs souvent utilisées en rhéologie pour décrire le comportement des suspensions. Enfin, la signification de lois rhéologiques moyennes dans le cas des suspensions rhéo-épaississantes est évoquée dans une dernière section.

### 2.3.1 Lois rhéologiques moyennes

L'expression du couple mesuré au rhéomètre est

$$\Gamma = 2\pi \int_{r=0}^{r=R} \tau(r)r^2 dr. \quad (2.7)$$

En faisant l'hypothèse que la contrainte de cisaillement est une fonction linéaire de  $r$  (cas d'une suspension Newtonienne sans migration), on a  $\tau(r) = \tau_{\max}r/R$ , où  $\tau_{\max} = \tau(r = R)$ , et on obtient

$$\begin{aligned} \Gamma &= 2\pi \int_{r=0}^{r=R} \tau_{\max} \frac{r}{R} r^2 dr \\ \Gamma &= \frac{\pi R^3}{2} \tau_{\max}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

La contrainte de cisaillement moyenne est elle donnée par

$$\begin{aligned} \bar{\tau} &\equiv \frac{1}{\pi R^2} \iint_S \tau(r) dS \\ \bar{\tau} &= \frac{2}{R^2} \int_{r=0}^{r=R} \tau(r) \frac{r^2}{R} dr. \\ \bar{\tau} &= \frac{2}{3} \tau_{\max}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

On peut ainsi exprimer la contrainte de cisaillement moyenne en fonction du couple mesuré au rhéomètre

$$\bar{\tau} = \frac{4\Gamma}{3\pi R^3}. \quad (2.10)$$

De même, on obtient que  $\overline{P_p^z} = \frac{2}{3} P_p^z(r = R)$ , et  $\bar{\dot{\gamma}} = \frac{2}{3} \dot{\gamma}(r = R)$ . Dans tous les résultats présentés dans la suite, les lois d'écoulement seront calculées à partir de ces grandeurs moyennes en utilisant les définition suivantes

$$\eta_s = \frac{\bar{\tau}}{\eta_f \bar{\dot{\gamma}}} \text{ et } \eta_n = \frac{\overline{P_p^z}}{\eta_f \bar{\dot{\gamma}}} \quad (2.11)$$

pour la rhéologie à volume imposé, et

$$\mu = \frac{\bar{\tau}}{\overline{P_p^z}} \text{ et } J = \frac{\eta_f \bar{\dot{\gamma}}}{\overline{P_p^z}}, \quad (2.12)$$

pour la rhéologie frictionnelle, mais par simplicité d'écriture la moyenne ne sera pas mentionnée. Ces formules montrent aussi que pour une suspension Newtonienne et en l'absence de migration, la rhéologie locale et celle issue des valeurs moyennes sont identiques.

### 2.3.2 Différences de contraintes normales

Le comportement des suspensions est souvent décrit à l'aide des différences de contraintes normales  $N_1 \equiv \sigma^{11} - \sigma^{22}$  et  $N_2 \equiv \sigma^{22} - \sigma^{33}$ , où la direction 1 est celle de la vitesse, la direction 2 celle du gradient de vitesse, et la direction 3 est celle du rotationnel de vitesse. Dans notre géométrie plan-plan, ces quantités s'écrivent :  $N_1 \equiv \sigma^{\theta\theta} - \sigma^{zz}$  et  $N_2 \equiv \sigma^{zz} - \sigma^{rr}$ , où  $\theta$  est la direction orthoradiale à l'écoulement [79]. On peut décomposer les contraintes  $\sigma^{ii}$  comme la somme des contraintes appliquées sur les particules et sur le fluide  $\sigma^{ii} = \sigma_p^{ii} + \sigma_\ell^{ii}$  [16, 21]. Dans la suite, on ne répétera pas les indices doublés, c'est à dire que  $\sigma^i \equiv \sigma^{ii}$ . Ces quantités font appel aux contraintes granulaires normales, qui sont définies selon la convention usuelle en mécanique des milieux continus : pour une compression, la contrainte est négative et pour une extension, la contrainte est positive. Jusqu'alors, nous avons parlé de *pression granulaire*. Par commodité, nous avons noté que la pression que l'on impose est  $P_p^z$  est positive, mais la contrainte normale résultante selon la convention précédente est  $\sigma_p^z = -P_p^z$ , qui est négative. La même remarque s'applique dans les directions radiale et orthoradiale  $\sigma_p^r \equiv -P_p^r$  et  $\sigma_p^\theta \equiv -P_p^\theta$ . En supposant que la contrainte normale dans le fluide est isotrope dans le régime dense [16, 21], on peut faire le lien entre la pression du liquide et la contrainte normale appliquée sur le fluide  $\sigma_\ell^i$  :  $\sigma_\ell^i = -P_\ell$ . Les contraintes normales totales s'écrivent alors  $\sigma^i = -P_p^i - P_\ell$ . Avec ces définitions, les différences de contraintes normales  $N_1$  et  $N_2$  s'écrivent :

$$\begin{aligned} N_1 &\equiv \sigma^\theta - \sigma^z = P_p^z - P_p^\theta \\ N_2 &\equiv \sigma^z - \sigma^r = P_p^r - P_p^z. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Nous avons déjà montré qu'on a accès à la pression granulaire dans la direction verticale  $P_p^z$  avec la balance, et dans la direction radiale  $P_p^r$  car c'est la pression que l'on impose. Ainsi, nous avons accès à la seconde différence de contraintes normales  $N_2$ . Peut-on avoir accès à la première différence de contraintes normales  $N_1$  ? La quantité qu'il nous manque pour cela est la pression granulaire dans la direction orthoradiale  $P_p^\theta$ . Une mesure directe de cette quantité semble impossible car il faudrait mettre des capteurs de pression dans la direction perpendiculaire à l'écoulement, ce qui perturberait fortement l'écoulement ! Pour accéder à  $N_1$ , nous pouvons utiliser une autre méthode. Si on consulte un livre ou un formulaire de rhéologie [80, 81], on trouve qu'en géométrie plan/plan pour un fluide Newtonien, la force normale totale  $F$  exercée sur les plaques du rhéomètre est proportionnelle à la différence  $N_1 - N_2$ . Cette formule peut être obtenue en exprimant la force normale totale  $F$  exercée par la suspension sur la plaque inférieure,

$$F = - \iint_S \sigma^z dS \quad (2.14)$$

ou encore,

$$F = \iint_S (P_\ell + P_p^z(r)) dS. \quad (2.15)$$

L'équation 2.14 utilise la définition du tenseur des contraintes et ne dépend pas de la nature du système utilisé (fluide, suspension, mousse...), tandis que l'équation 2.15 traduit le fait que nous travaillons avec une suspension, pour laquelle on peut séparer la contrainte normale

totale en contrainte normale sur la phase liquide et sur la phase granulaire. C'est cette équation que nous avons utilisé précédemment pour exprimer la pression granulaire  $P_p^z$ . Pour une suspension, les deux expressions sont vérifiées et nous pouvons à présent travailler sur la première équation pour faire apparaître les différences de contraintes normales  $N_1$  et  $N_2$ . L'équation de Stokes projetée sur  $r$ , [80, 81], lie les composantes radiales et orthoradiales des contraintes normales selon

$$\frac{\partial \sigma^r}{\partial r} + \frac{\sigma^r - \sigma^\theta}{r} = 0, \quad (2.16)$$

soit

$$\frac{\partial \sigma^r}{\partial r} - \frac{N_1 + N_2}{r} = 0. \quad (2.17)$$

On remarque ensuite que

$$\frac{\partial \sigma^z}{\partial r} = \frac{\partial \sigma^r}{\partial r} - \frac{\partial(\sigma^r - \sigma^z)}{\partial r} = \frac{\partial \sigma^r}{\partial r} + \frac{\partial N_2}{\partial r}, \quad (2.18)$$

que l'on utilise dans 2.17 pour obtenir

$$\frac{\partial \sigma^z}{\partial r} = \frac{N_1 + N_2}{r} + \frac{\partial N_2}{\partial r}. \quad (2.19)$$

On peut ensuite intégrer entre  $r$  et  $R$  en utilisant le fait que  $\sigma^r(R) = \sigma_p^r(R) - P_\ell = 0$ ,

$$\sigma^z(r) = - \int_r^R \frac{N_1 + N_2}{r} dr + N_2(r). \quad (2.20)$$

On obtient ainsi une expression de la contrainte dans la direction verticale en fonction des différences de contraintes normales  $N_1$  et  $N_2$ . En intégrant cette expression selon l'équation 2.14, on obtient que la force normale totale

$$F = -2\pi \left[ \int_0^R N_2(r) r dr - \int_0^R \left( \int_r^R \frac{N_1 + N_2}{r} dr \right) r dr \right], \quad (2.21)$$

qui donne par intégration par partie

$$\begin{aligned} F &= -2\pi \left[ \int_0^R N_2(r) r dr - \int_0^R \left( \frac{N_1(r) + N_2(r)}{r} \right) \frac{r^2}{2} dr \right] \\ F &= \pi \int_0^R [N_1(r) - N_2(r)] r dr. \end{aligned} \quad (2.22)$$

En faisant la même hypothèse que précédemment, i.e. que les contraintes sont des fonctions linéaires de  $r$  (suspension Newtonienne et pas de migration), on obtient bien que

$$F = \frac{\pi R^2}{2} (\overline{N_1} - \overline{N_2}), \quad (2.23)$$

en rappelant que  $\overline{N_i} = (1/S) \iint_S N_i dS$ . Or, comme on l'a vu plus haut (équation 2.2), on a aussi  $F = mg = \pi R^2 (P_\ell + \overline{P}_p^z)$ . En utilisant cette expression, la définition de  $N_1$ , la condition aux limites des contraintes radiales :  $P_p^r(R) + P_\ell = 0$  et le fait que pour une dépendance linéaire  $\overline{P}_p^r = (2/3) P_p^r(R)$ , on peut exprimer  $\overline{N_1}$  et  $\overline{P}_p^\theta$  en fonction des quantités mesurées

avec le Capillarytron :

$$\bar{N}_1 = 2 \frac{mg}{\pi R^2} + \bar{N}_2, \quad (2.24)$$

et

$$\bar{P}_p^\theta = \bar{P}_p^z - \bar{N}_1 = 2\bar{P}_p^r = -\frac{4}{3}P_\ell. \quad (2.25)$$

Rappelons que ces résultats supposent que la suspension est Newtonienne et qu'il n'y a pas de migration. Notons que l'on peut également retrouver ces résultats en écrivant que les contraintes dépendent linéairement de  $r$ ,  $P_p^r = P_p^r(R)r/R$ , et  $P_p^\theta = P_p^\theta(R)r/R$ . L'équilibre mécanique donné par l'équation de Stokes 2.17 implique alors que

$$P_p^\theta(r) = 2P_p^r(r). \quad (2.26)$$

Ce résultat est en accord avec Morris & Boulay (1999), qui ont montré que cet équilibre des contraintes est nécessaire pour assurer l'absence de migration [79].

### 2.3.3 Cas des suspensions rhéo-épaississantes

Nous avons vu dans les deux paragraphes précédents que pour une suspension Newtonienne et en l'absence de migration, les grandeurs rhéologiques moyennes mesurées à l'aide du Capillarytron ( $\bar{\tau}$ ,  $\bar{P}_p^z$ ,  $\bar{\gamma}$ ,  $\phi$ ) donnent directement accès à la rhéologie locale, que ce pour la formulation à volume imposé ( $\eta_s(\phi)$ ,  $\eta_n(\phi)$ ) ou celle à pression imposée ( $\mu(J)$ ,  $\phi(J)$ ). Qu'en est-il alors pour une suspension rhéo-épaississante, pour laquelle la viscosité de la suspension peut dépendre fortement du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et donc pour laquelle il peut y avoir coexistence d'une partie non-frottante au centre de l'échantillon et d'une partie frottante à l'extérieur ? Pour donner un premier élément de réponse à cette question, on peut faire l'hypothèse que la fraction volumique reste homogène et intégrer la solution proposé par le modèle de Wyart et Cates sur l'échantillon afin de comparer la rhéologie issue de grandeurs rhéologiques moyennes à la rhéologie locale.

Le taux de cisaillement reste une fonction linéaire de  $r$  du fait des conditions aux limites  $\dot{\gamma}(r) = \dot{\gamma}_{\max}r/R$ . La viscosité  $\eta_s(\tau, \phi)$  est calculée grâce au modèle de Wyart & Cates (chapitre 1, Equ. 4.1) et en utilisant les paramètres  $\eta_f = 10^{-3}$  Pa.s,  $\tau_c = 10$  Pa,  $\phi_1 = 0.58$  et  $\phi_0 = 0.64$ . On peut en déduire  $\tau(\dot{\gamma}, \phi)$ , que l'on intègre numériquement pour obtenir le couple total selon

$$\begin{aligned} \Gamma &= 2\pi \int_{r=0}^{r=R} \tau(r)r^2 dr \\ &= 2\pi \left( \frac{R}{\dot{\gamma}_M} \right)^2 \int_{\dot{\gamma}=0}^{\dot{\gamma}=\dot{\gamma}_M} \tau(\dot{\gamma})\dot{\gamma}^2 d\dot{\gamma} \\ &= 2\pi \left( \frac{R}{\dot{\gamma}_M} \right)^2 \int_{\dot{\gamma}=0}^{\dot{\gamma}=\dot{\gamma}_M} \eta_f \eta_s(\phi, \dot{\gamma}) \dot{\gamma}^3 d\dot{\gamma}, \end{aligned} \quad (2.27)$$

De là, on peut calculer la contrainte de cisaillement moyenne

$$\bar{\tau} = \frac{4\Gamma}{3\pi R^3}, \quad (2.28)$$

puis la viscosité de cisaillement moyenne

$$\overline{\eta}_s = \frac{\overline{\tau}}{\eta_f \overline{\dot{\gamma}}}. \quad (2.29)$$

La figure 2.14 compare, pour la viscosité, la rhéologie issue des grandeurs moyennes à la rhéologie locale pour  $\phi = 56.5\%$ .

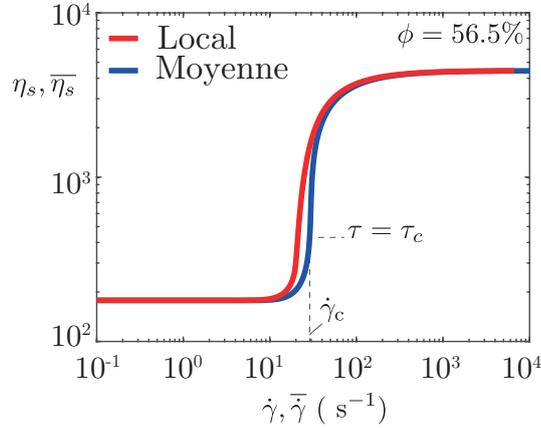


FIGURE 2.14 – Comparaison rhéologie moyenne et locale : viscosité locale  $\eta_s$  et moyenne  $\overline{\eta}_s$  versus taux de cisaillement local  $\dot{\gamma}$  et moyen  $\overline{\dot{\gamma}}$ .

On constate que de part et d'autre de la transition, les deux rhéologies sont quasi-identiques, même à fort taux de cisaillement où une partie non-frottante au centre de l'échantillon ( $r < R$ ) coexiste avec une partie frottante vers l'extérieur de l'échantillon ( $r \approx R$ ). Cette dernière est largement dominante du fait de la dépendance du couple en  $\sim \dot{\gamma}^3$ . Le couple total mesuré est alors largement déterminé par la zone de l'échantillon à plus fort taux de cisaillement. Proche de la transition, la rhéologie moyenne ne donne pas précisément accès à la rhéologie locale. Nous reviendrons sur ce point délicat, car potentiellement plus complexe que tel que décrit ci-dessus, lorsque nous présenterons les résultats obtenus pour des suspensions rhéo-épaississantes.

\*\*\*

Dans ce chapitre, j'ai présenté le principe de fonctionnement du Capillarytron en mode volume et pression imposée, et montré que ce nouveau rhéomètre devrait permettre d'accéder à la fois à la viscosité de cisaillement  $\eta_s(\phi)$  et normale  $\eta_n(\phi)$ , mais aussi à la rhéologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  pour des suspensions composées de particules de très petite taille. En mode volume imposé, la seringue devrait nous permettre d'accéder à des fractions volumiques très élevées, car l'échantillon peut être concentré *in situ*. En mode pression imposée, la pression granulaire étant contrôlée par l'interface capillaire air/suspension, il devrait être possible d'imposer  $J$  et  $P_p/P^*$  indépendamment. On peut en effet imaginer faire des expériences en gardant  $P_p/P^*$  constant et varier  $J$  (en diminuant le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ ), ou bien varier  $P_p/P^*$  tout en gardant  $J$  constant (en augmentant  $\dot{\gamma}$  et  $P_p$  proportionnellement).

Cette possibilité sera particulièrement intéressante pour sonder les propriétés frictionnelles des suspensions rhéo-épaississantes. Nous avons aussi montré que le Capillarytron donne accès aux contraintes granulaires verticale  $P_p^z$  et radiale  $P_p^r$ , et donc à  $N_2 = P_p^r - P_p^z$ . De plus, pour une suspension Newtonienne et en l'absence de migration (que l'on a pu vérifier par des visualisations directes dans une suspension rendue iso-indice), les grandeurs mesurées donnent aussi accès à la contrainte granulaire orthoradiale  $P_p^\theta$  et à  $N_1 = P_p^z - P_p^\theta$ .

Avant de s'attaquer à la rhéologie des suspensions rhéo-épaississantes, il est d'abord nécessaire d'établir la preuve de concept du Capillarytron. Pour cela, nous allons dans le chapitre suivant commencer par étudier une suspension 'classique' de particules macroscopiques (suspensions granulaires non-Brownienne), dont la rhéologie est dominée par les contacts solides et les interactions hydrodynamiqueest bien connue. Cela me permettra de valider la preuve de concept du Capillarytron et aussi de valider les protocoles expérimentaux décrits ci-dessus.

---

## Le Capillarytron : preuve de concept

---

L'objectif de ce chapitre est de valider la preuve de concept du *Capillarytron*. Pour cela, j'ai commencé par identifier une suspension 'classique' Newtonienne composée de particules macroscopiques ( $d \gtrsim 100 \mu\text{m}$ ). Cette suspension, non-rhéo-épaississante et dont la rhéologie est bien établie, est nécessaire afin de correctement calibrer les protocoles de mesures et aussi afin de vérifier la validité des mesures rendues accessibles par le Capillarytron. Pour cette preuve de concept, j'ai d'abord effectué une première série de mesures à *Volume imposé*, qui est la configuration rhéométrique la plus standard, mais pour laquelle les spécificités du Capillarytron permettent d'accéder à l'ensemble de la rhéologie (contraintes tangentielles et contraintes normales particulières). J'ai ensuite étudié le comportement rhéologique de la même suspension à *Pression imposée*, ce qui permet d'établir les lois constitutives  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  de la suspension. La comparaison de ces deux approches et de l'ensemble des résultats avec la littérature me permet de valider la preuve de concept du *Capillarytron*, de documenter l'ensemble des paramètres accessibles et aussi d'identifier pour chacun de ces paramètres leur gamme de mesure accessible. Je conclus le chapitre par une description des principales difficultés expérimentales rencontrées et des solutions mises en place pour cette preuve de concept.

### 3.1 Recherche d'une suspension 'classique' Newtonienne

La première étape a consisté à identifier une suspension 'classique' Newtonienne modèle, i.e. une suspension de particules rigides, frottantes et non-Browniennes immergées dans un fluide visqueux et Newtonien. Si l'analyse faite au § 1.2 indique qu'une telle suspension devrait simplement être composée de particules assez grandes (typiquement  $d \gtrsim 100 \mu\text{m}$ ) afin d'être insensible à l'agitation thermique, et aussi afin que toutes les forces d'origine physico-chimique (forces répulsives électrostatiques, force de Van der Waals, etc) soient négligeables devant les forces de trainée hydrodynamique, il est en pratique bien difficile de trouver une telle suspension modèle! Nombre de suspensions, même composées de particules macrosco-

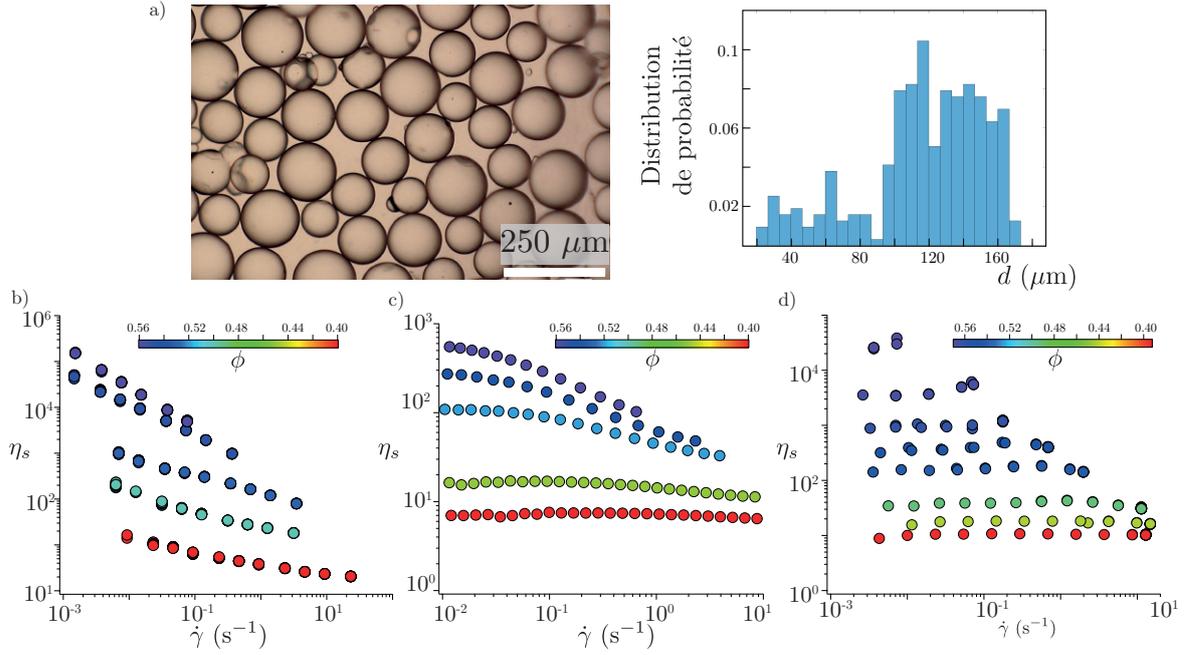


FIGURE 3.1 – a) Particules de PMMA utilisées, et distribution de taille. b)-d) Viscosité de cisaillement versus taux de cisaillement à différentes fractions volumiques, pour des suspensions de billes de PMMA dans différents fluides. a) Mélange eau-glycérol b) Mélange Triton X-100/eau/ZnCl<sub>2</sub> c) Triton X-100 pur.

piques, ont un comportement non-newtonien et en particulier rhéo-fluidifiant aux grandes concentrations [25, 63, 66, 67, 82].

La première suspension que l'on a testée est composée de particules sphériques de PMMA de diamètre  $d \simeq 120 \mu\text{m}$ , cf. figure 3.1a, immergées dans un mélange eau/glycérol à 76% de concentration massique en glycérol. La figure 3.1b montre la viscosité de cette suspension en fonction du taux de cisaillement mesurée à différentes fractions volumiques. On remarque que la suspension est fortement rhéo-fluidifiante, et ce même pour une fraction volumique de  $\phi = 40\%$ . Ce comportement rhéo-fluidifiant de la suspension est problématique pour calibrer le bon fonctionnement du Capillarytron. En effet, si les contraintes  $\tau$  et  $P_p$  n'évoluent pas de façon linéaires avec le taux de cisaillement à volume imposé, alors à une valeur de  $\phi$  correspond une plage de valeur de  $J = \eta_f \dot{\gamma} / P_p$ , qui est d'autant plus grande que la rhéo-fluidification de la suspension est forte. On ne peut ainsi pas déterminer précisément la loi  $\phi(J)$  et plus généralement la rhéologie frictionnelle de la suspension.

En suivant l'analyse dimensionnelle faite au § 1.3.3, une dépendance de la viscosité avec le taux de cisaillement indique l'existence d'une échelle de force supplémentaire par rapport au modèle de la suspension 'classique' Newtonienne. Une possibilité serait la présence de forces d'adhésions non négligeables lorsque la suspension est soumise à des faibles contraintes de cisaillement. Il a par exemple été reporté que les forces de van der Waals peuvent avoir une influence sur la rhéologie de suspensions non-Browniennes, dont les particules ont un diamètre  $d$  de plusieurs dizaines de microns [83, 84]. La force de van der Waals entre deux sphères identiques de diamètre  $d = 2R$  séparées par une distance  $z_c \ll R$  est donnée par

[52]  $F_{\text{vdW}} = AR/(12z_c^2)$ , où  $A$  [J] est la constante de Hamaker, qui dépend des propriétés des particules et du fluide. En régime concentré, la contrainte d'adhésion typique entre les particules au sein de la suspension peut alors être estimée en divisant la force d'adhésion  $F_{\text{vdW}}$  par la surface typique d'une particule,  $\pi R^2$ , soit  $\tau_{\text{vdW}} \simeq F_{\text{vdW}}/(\pi R^2) \simeq A/(12\pi z_c^2 R)$ . L'expression de la constante de Hamaker pour des interactions non-retardées est donnée par la théorie de Lifshitz [52, 83]

$$A = \frac{3k_B T}{4} \left( \frac{\varepsilon_f - \varepsilon_p}{\varepsilon_f + \varepsilon_p} \right)^2 + \frac{3h\nu_e}{16\sqrt{2}} \frac{(n_f^2 - n_p^2)^2}{(n_f^2 + n_p^2)^{3/2}}, \quad (3.1)$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $T$  est la température,  $\varepsilon_f$  et  $\varepsilon_p$  sont les constantes diélectriques du fluide et des particules,  $h$  est la constante de Planck,  $\nu_e$  la fréquence d'absorption des particules, et  $n_f$  et  $n_p$  sont les indices de réfraction du fluide et des particules. Les propriétés des particules de PMMA utilisées sont :  $\varepsilon_p \simeq 4.9$ ,  $n_p \simeq 1.490$ ,  $\nu_e \simeq 3 \times 10^{15}$  Hz, et celles du glycérol sont :  $\varepsilon_f \simeq 42.5$ ,  $n_f \simeq 1.36$ , ce qui implique  $A \simeq 0.6 \times 10^{-20}$  J. La contrainte d'adhésion pour des particules de taille  $R = d/2 = 60 \times 10^{-6}$  m est alors :  $\tau_{\text{vdW}} \simeq (3/z_c^2)$  Pa, avec  $z_c$  exprimé en nm. Nous voyons sur cette formule toute la difficulté d'estimer les contraintes attractives de van der Waals, car elles font intervenir le carré de la distance entre particules au contact  $z_c$ . Cette distance est mal connue et peut dépendre de la taille des aspérités, de l'élasticité des particules ou des autres forces de surfaces. Pour que ces contraintes influencent la rhéologie dans la gamme de contraintes explorées,  $\tau \in [0.02 - 200]$  Pa, on trouve que la distance  $z_c$  doit être comprise entre 0.1 et 12 nm, ce qui n'est pas totalement irréaliste (Tsai et Viers donne par exemple une valeur  $z_c \sim 5$  nm pour la distance minimale entre particules de polystyrène avant floculation [83]).

Ainsi, en supposant que la rhéo-fluidification que nous observons provient de forces attractives de type van der Waals, nous pouvons tenter de diminuer cet effet en changeant le fluide suspendant pour qu'il ait un indice optique le plus proche possible de celui des particules. En effet, le second terme de l'équation (3.1) est fortement dépendant des indices de réfraction des particules et du fluide, allant comme la différence d'indices au carré. Pour réaliser cet ajustement d'indice, nous avons utilisé deux autres fluides : le premier est une mixture de Triton X-100/eau/ZnCl<sub>2</sub> décrit en section § 2.2.7 et d'indice optique  $n_f \simeq 1.4989$  et le second est du Triton X-100 pur d'indice optique  $n_f \simeq 1.492$ , tout deux très proches en indice du PMMA ( $n_p \simeq 1.490$ ). La constante diélectrique du triton X-100 est  $\varepsilon_p \simeq 4.63$  [85]. On peut alors estimer que la contrainte attractive de van der Waals entre particules dans le Triton pur est réduite d'un facteur 2000 par rapport au cas du mélange eau/glycérol.

La figure 3.1c et 3.1d montre les rhéogrammes obtenus avec ces deux nouveaux fluides. On observe qu'avec la mixture Triton X-100/eau/ZnCl<sub>2</sub>, le comportement rhéo-fluidifiant est bien atténué. Cette suspension reste cependant fortement rhéo-fluidifiante pour des fractions volumiques supérieures à  $\phi \simeq 50\%$ . La grande surprise a été que le comportement de la suspension préparée avec du Triton X100 pur est lui 'parfaitement' Newtonien, et cela sur toute la gamme de fractions volumiques  $\phi \in [0.40 - 0.57]$  et de contraintes  $\tau \in [0.1 - 100]$  Pa explorée. Nous ne comprenons pas vraiment l'origine de cette différence de comportements, surtout que l'on peut observer à l'oeil que la mixture Triton X-100/eau/ZnCl<sub>2</sub> assure un meilleur ajustement

d'indice avec les particules que le Triton pur. Une hypothèse serait que le premier terme de l'équation (3.1) soit très différent dans les deux systèmes, mais on ne peut malheureusement pas la tester car on ne connaît pas la permittivité de la mixture Triton X-100/eau/ZnCl<sub>2</sub>. Une autre hypothèse serait que les forces d'adhésion à l'origine du rhéo-épaississement que nous observons ne proviennent pas uniquement des forces de van der Waals. Un article récent montre en effet qu'avec des particules de PMMA, les forces d'adhésions entre particules peuvent fortement dépendre de la nature du fluide suspendant et de son affinité avec le PMMA, qui tend à plus ou moins à déployer les polymères de PMMA à la surface des particules [86].

Pour aller plus loin dans la compréhension de l'origine de ces forces d'adhésion et du comportement rheo-fluidifiant des suspensions, il faudrait pouvoir caractériser directement les forces d'adhésions entre les particules in-situ, par exemple par des mesures de type AFM. De telles mesures suggèrent que le caractère non-Coulombien de la friction entre les particules à faibles contraintes, et non les forces d'attraction, pourrait également jouer un rôle dans la rhéo-fluidification dans certains systèmes. La compréhension de l'origine du comportement rhéo-fluidifiant des suspensions non-Browniennes est un sujet à part entière de recherche qui est actuellement très actif [25, 63, 66, 67], mais qui dépasse le cadre de ma thèse. J'ai donc choisi de me focaliser sur les questions propres à la problématique de ma thèse en utilisant la suspension obtenue avec le Triton X-100 qui, par son comportement de suspension 'classique' Newtonienne modèle, fournit des conditions idéales pour valider la preuve de concept du Capillarytron.

### 3.2 Rhéologie à *Volume imposé*

Maintenant que nous disposons d'une suspension 'classique' Newtonienne, nous pouvons caractériser sa rhéologie à l'aide du Capillarytron en mode *Volume imposé*, cf. figure 2.1, et en utilisant le protocole 'Protocole de mesure à *volume imposé*' décrits au chapitre précédent. Pour rappel, la suspension est initialement préparée à une fraction volumique  $\phi = 0.40$ . Pour chaque mesure, la suspension est pré-cisaillée pour une déformation minimum  $\dot{\gamma}t = 10$ , et la fraction volumique est augmentée entre chaque mesure en pompant le fluide à l'aide de la seringue et en diminuant la distance de l'entrefer, tout en conservant la même quantité de particules.

La figure 3.2a représente la viscosité de cisaillement  $\eta_s$  de cette suspension en fonction du taux de cisaillement pour différentes fractions volumiques  $\phi \in [0.40 - 0.57]$ . Pour ces mesures, j'ai fait varier  $\dot{\gamma}$  sur la plage la plus grande possible pour chacune des fractions volumiques. La borne supérieure de  $\dot{\gamma}$  est celle pour laquelle, par déstabilisation du ménisque, la suspension peut être éjectée hors du gap. La borne inférieure est donnée par deux limitations : la première est que la vitesse de rotation du rhéomètre  $n$  peut devenir trop petite afin que l'on puisse faire une mesure significative assurant  $\gamma = \dot{\gamma}t \geq 10$  dans un temps raisonnable. L'autre limitation est le couple minimum accessible grâce au rhéomètre  $\Gamma_{\min} \approx 0.5 \times 10^{-6}$  N.m. Cette figure illustre le comportement bien Newtonien de la suspension sur toute la plage de  $\phi$  et de  $\dot{\gamma}$  explorée. Elle permet aussi d'identifier la plage plus restreinte pour laquelle il est

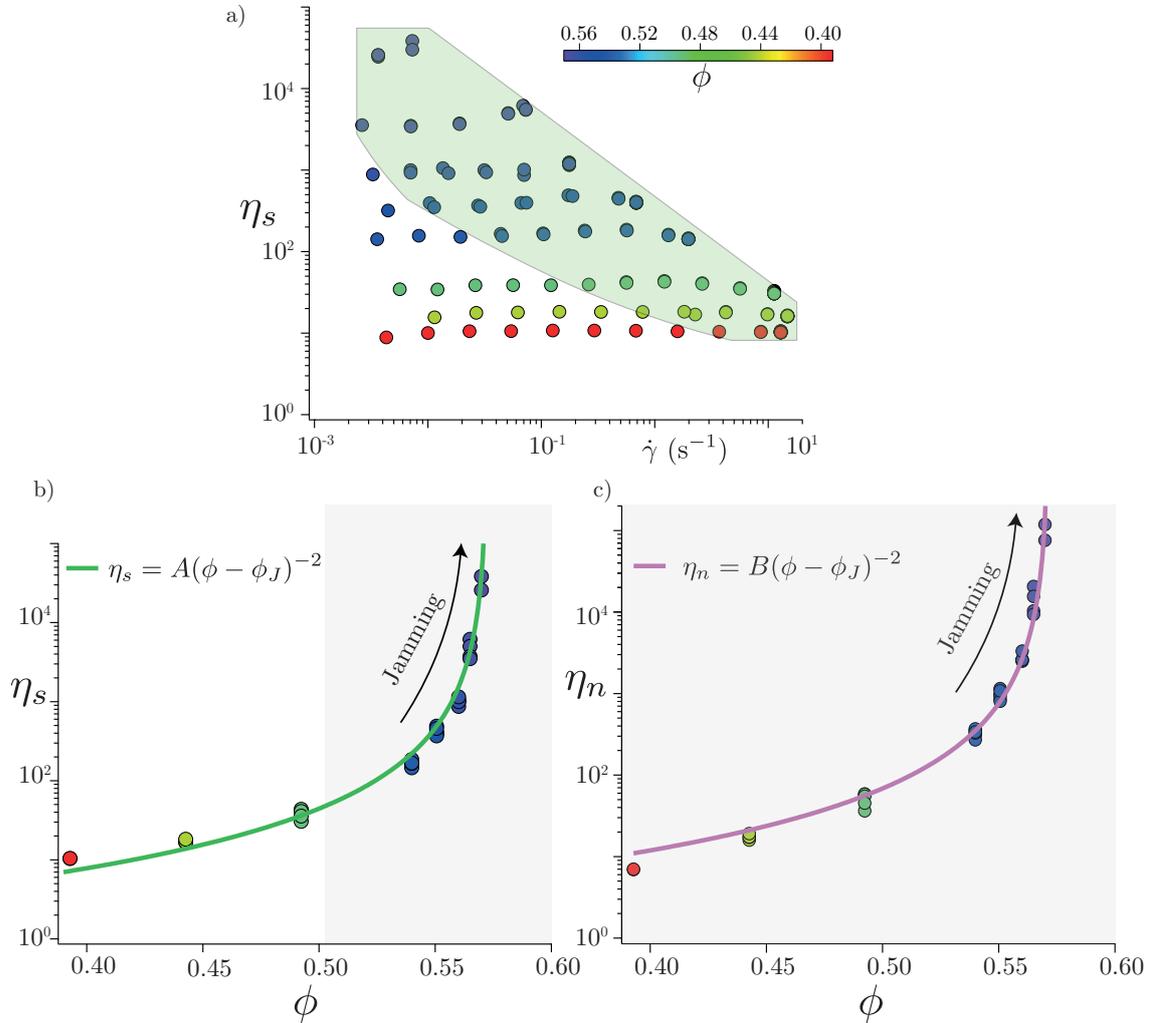


FIGURE 3.2 – Comportement rhéologique à volume imposé. a) Viscosité de cisaillement adimensionnée  $\eta_s$  versus taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour la suspension ‘classique’ Newtonienne. Zone sur-lignée en vert : région pour laquelle la pression granulaire peut être mesurée. b) Viscosité de cisaillement adimensionnée  $\eta_s$  versus fraction volumique  $\phi$ . Fit :  $\eta_s(\phi) = A(\phi - \phi_J)^{-2}$  avec  $A=0.23$  et  $\phi_J = 0.572 \pm 0.002$ . c) Viscosité normale adimensionnée  $\eta_n$  versus fraction volumique  $\phi$ . Fit :  $\eta_n(\phi) = B(\phi - \phi_J)^{-2}$  avec  $B=0.35$  et  $\phi_J = 0.572 \pm 0.002$ . Zone sur-lignée en gris : mesures généralement inaccessibles en rhéométrie conventionnelle.

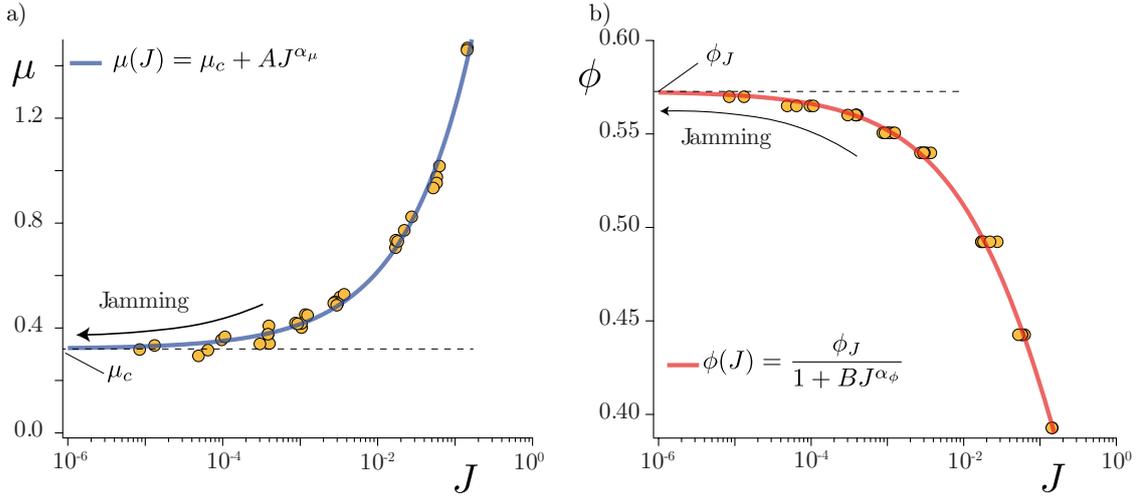


FIGURE 3.3 – Rhéologie frictionnelle obtenue à *Volume imposé* à partir des données de la figure 3.2. a) Coefficient de friction macroscopique  $\mu = \tau/P_p = \eta_s/\eta_m$  versus nombre visqueux  $J = \eta\dot{\gamma}/P_p = 1/\eta_m$ . Fit :  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{1/2}$ , avec  $\mu_c = 0.32 \pm 0.02$  et  $A = 2.87$ . b) Fraction volumique  $\phi$  versus  $J$ . Fit :  $\phi(J) = \phi_J/(1 + BJ^{1/2})$  avec  $\phi_J = 0.573 \pm 0.002$  et  $B = 1.19$ .

possible de quantifier la rhéologie frictionnelle (zone sur-lignée en vert). En effet les capteurs n'ont pas tous la même précision de mesure. Le capteur de couple du rhéomètre permet de mesurer des couples  $\Gamma \in [0.5 \times 10^{-6}; 0.2]$  Nm ce qui correspond à des contraintes de cisaillement  $\tau \in [0.03; 5500]$  Pa. La balance permet de détecter des masses  $m \in [10^{-2}; 2000]$  g, ce qui correspond à des contraintes normales  $P \in [0.5; 10^5]$  Pa. Enfin, le capteur de pression mesure la pression du fluide  $-P_\ell \in [1; 600]$  Pa. C'est donc le capteur de pression qui est le plus limitant (rappelons que 1 Pa correspond à une hauteur d'eau de seulement 0.1 mm)! En pratique, cela signifie que si la fraction volumique et/ou le taux de cisaillement sont trop faibles, le signal de pression fluide mesuré avec le capteur différentiel n'est pas suffisant pour déterminer les contraintes granulaires. Du fait de cette limite, on peut estimer que le Capillarytron ne permet d'accéder à la pression granulaire, et donc à la viscosité normale  $\eta_n(\phi)$  et à la rhéologie frictionnelle  $(\mu(J), \phi(J))$  de la suspension, que sur la zone sur-lignée en vert dans la figure 3.2a.

Ces mesures nous permettent de représenter la viscosité adimensionnée  $\eta_s(\phi)$ , cf. figure 3.2c. Les données expérimentales peuvent être correctement fittées par une loi du type  $\eta_s = 0.23(\phi_J - \phi)^{-2}$  avec  $\phi_J = 0.572 \pm 0.002$ . L'incertitude sur  $\phi_J$  correspond à la déviation standard sur l'ensemble des mesures réalisées. Cette définition des barres d'erreur reste valable sur l'ensemble du manuscrit. On trouve bien une divergence en  $\phi_J$ , avec un exposant -2 tel que présentée § 1.2.3. À ce niveau, il est important de souligner trois points qui singularisent le Capillarytron des rhéomètres conventionnels à volume imposé :

- D'abord, comme je l'ai rappelé dans l'introduction, les mesures à volume imposé sont en général très difficiles à réaliser lorsque la fraction volumique  $\phi > 0.50$ . On voit ici que, grâce à la seringue qui permet de modifier la fraction volumique *in situ*, nous pouvons facilement sonder la rhéologie de la suspension jusqu'à  $\phi = 0.57$ , i.e jusqu'à  $\phi_J - \phi = 0.002$ . Cet aspect présente un avantage important car, en s'approchant si proche du jamming, il est ainsi possible de caractériser l'exposant de la divergence et

la valeur de  $\phi_J$  avec plus de précision.

- Le deuxième point important, toujours propre au Capillarytron, est que par la mesure de la pression fluide, nous avons accès à la pression granulaire. Nous pouvons ainsi obtenir l'évolution de la seconde loi constitutive de la suspension qui décrit l'évolution des contraintes normales. La figure 3.2b présente la viscosité normale adimensionnée  $\eta_n(\phi)$ , que l'on peut obtenir à partir des données correspondant à la zone sur-lignée en vert de la figure 3.2a. On trouve que la viscosité normale diverge à la même fraction volumique  $\phi_J = 0.572 \pm 0.002$ , selon une loi  $\eta_n = B(\phi - \phi_J)^{-2}$  avec  $B = 0.35$ , résultat qui se trouve aussi être en bon accord avec la littérature, cf. §1.2 et [16, 20, 21].
- Enfin, bien que l'on soit toujours à volume imposé, il est possible d'accéder à la rhéologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  de la suspension en utilisant les équations (2.2) et (2.3). En effet, connaissant la viscosité de cisaillement et la viscosité normale obtenue pour un taux de cisaillement et une fraction volumique donnés, on peut calculer  $\mu = \tau/P_p = \eta_s/\eta_n$ ,  $J = \eta_f \dot{\gamma}/P_p = 1/\eta_n$  et ainsi tracer  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$ . Les résultats sont présentés sur la figure 3.3. On trouve que le coefficient de friction macroscopique de la suspension  $\mu$  suit une loi du type  $\mu = \mu_c + AJ^{0.5}$  avec  $\mu_c = 0.32 \pm 0.02$  et  $A = 2.87$ . La valeur obtenue pour  $\mu_c = 0.32 \pm 0.02$  est typique des suspensions de grains macroscopiques frottants [20] (la valeur  $\mu_c = 0.32$  correspond à un "angle de tas"  $\theta = \arctan \mu_c = 18^\circ$ ). L'exposant 1/2 est également caractéristique des suspensions visqueuses de grains frottants [22], et est en bon accord avec les prédictions théoriques récentes de DeGiuli *et al.* [29]. Le coefficient  $A = 2.87$  est légèrement inférieur à celui reporté par Tapia *et al.* qui trouvent  $A = 5.45$  [22]. De même, l'évolution de la fraction volumique en fonction du nombre visqueux est bien ajustée par  $\phi(J) = \phi_J/(1 + BJ^{1/2})$  avec  $B = 1.19$  en bon accord avec Boyer *et al.* [20] et Tapia *et al.* [22] qui utilisent  $B = 1$ .

Les mesures présentées ci-dessus montrent que le *Capillarytron* en mode *volume imposé* permet de quantifier à la fois la viscosité de cisaillement  $\eta_s(\phi)$ , la viscosité normale  $\eta_n(\phi)$ , mais aussi la rhéologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  d'une suspension 'classique' Newtonienne. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec le comportement attendu. On pourra souligner la grande dynamique de mesure donnée par le *Capillarytron* aussi bien sur  $\phi$  que sur  $J$ . En effet, ici les mesures à *Volume imposé* peuvent être étendues à des fractions volumiques allant jusqu'à  $\phi = 0.57$ , très proche de la fraction volumique de jamming  $\phi_J = 0.572$ . On peut aussi remarquer que la mesure de  $\mu(J)$  s'étend sur une plage de valeur de  $J$  couvrant ici 4.5 décades, à comparer au 2.5 décades accessibles grâce au rhéomètre à pression imposée existant à l'IUSTI et utilisant une grille rigide et mobile [22].

### 3.3 Rhéologie à *Pression imposée*

L'intérêt principal du *Capillarytron* est qu'il permet d'effectuer des mesures à pression imposée. Pour rappel, dans cette configuration la pression du liquide est fixée par la hauteur  $H$  du réservoir, ce qui impose la pression granulaire. La fraction volumique, de son côté,

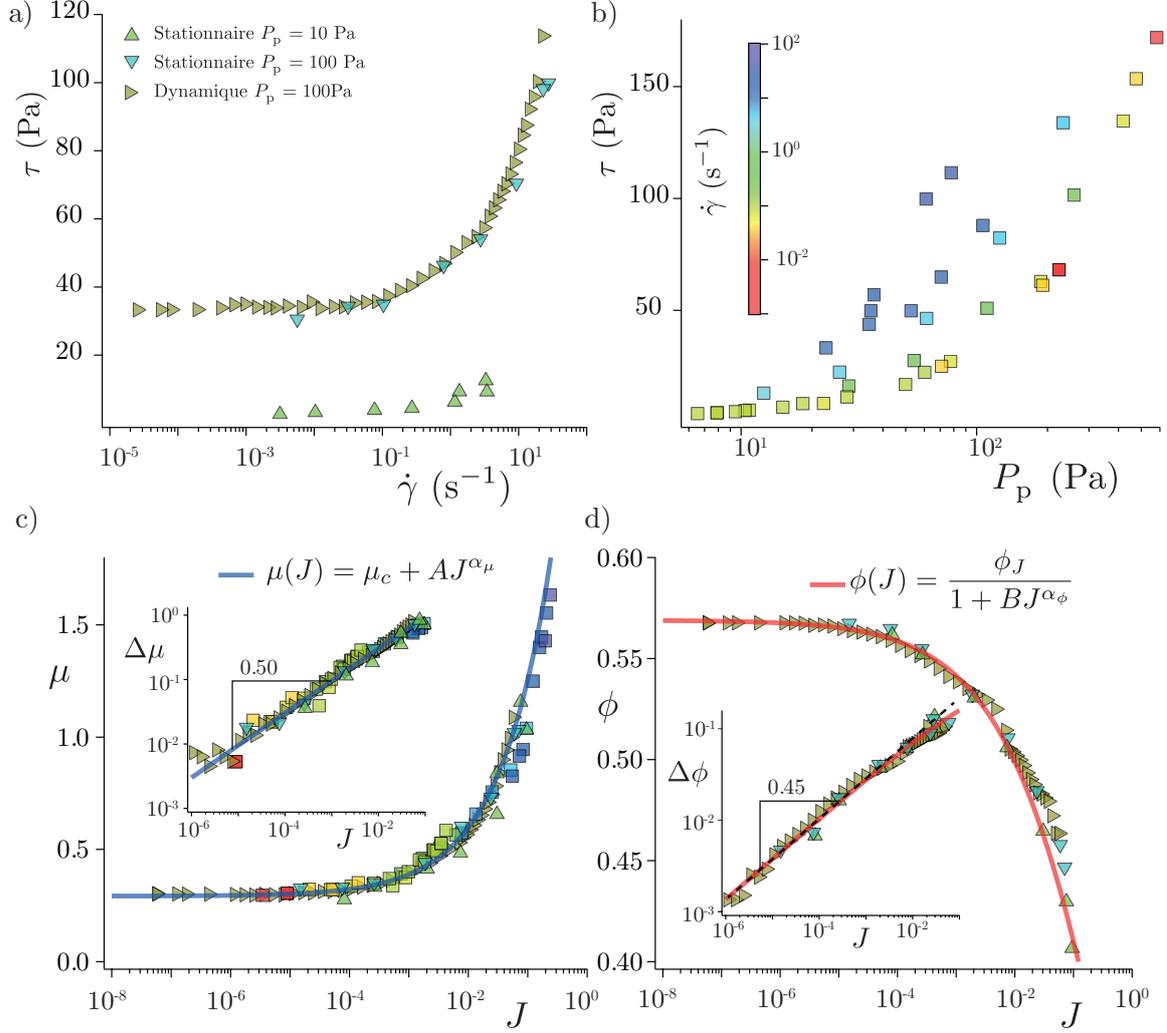


FIGURE 3.4 – Rhéologie frictionnelle obtenue à Pression imposée. Mesures brutes obtenues pour la contrainte de cisaillement  $\tau$  en faisant varier a) le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  à pression granulaire constante, et b) la pression granulaire  $P_p$  à taux de cisaillement constant. c) Coefficient de friction macroscopique  $\mu = \tau/P_p$  en fonction du nombre visqueux  $J$ . Fit :  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$ , avec  $\mu_c = 0.292 \pm 0.004$ ,  $\alpha_\mu = 0.5$  et  $A = 3.05$ . Inset :  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  versus  $J$  en échelles logarithmiques. d) Fraction volumique  $\phi$  en fonction du nombre visqueux  $J$ . Fit :  $\phi(J) = \phi_J / (1 + BJ^{\alpha_\phi})$  avec  $\phi_J = 0.570 \pm 0.003$ ,  $\alpha_\phi = 0.45$ , et  $B = 1.15$ . Inset :  $\Delta\phi = \phi_J - \phi$  versus  $J$  en échelles logarithmiques.

est libre de s'ajuster en fonction du taux de cisaillement que l'on impose. Je détaille dans la suite les résultats obtenues sur la même suspension 'classique' Newtonienne en utilisant le Capillarytron en mode *pression imposée*, cf. figure § 2.1.3, et en suivant les protocoles stationnaire et dynamique décrits dans l'encadré 'Protocoles de mesures à pression imposée' du chapitre précédent. Cette fois, pour faire varier le nombre visqueux  $J = \eta\dot{\gamma}/P_p$ , qui contrôle la rhéologie de la suspension, les mesures peuvent être conduites soit en variant le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une valeur de pression granulaire  $P_p^z$  donnée, ou réciproquement en faisant varier la pression granulaire  $P_p^z$  pour une valeur de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  donnée.

Les figures 3.4 a et b reportent les données brutes du taux de cisaillement  $\tau$  mesurées en faisant varier respectivement soit le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour deux valeurs de la pression granulaire ( $P_p = 10$  Pa et  $P_p = 100$  Pa), soit en faisant varier la pression  $P_p$  pour un taux de cisaillement donné. Dans le premier cas (taux de cisaillement variable), j'ai effectué des mesures stationnaires, mais aussi une rampe dynamique qui consiste à continuellement et lentement diminuer le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  à pression granulaire constante, jusqu'à atteindre le jamming. On constate que dans cette représentation où les contraintes sont tracées en fonction de  $\dot{\gamma}$  ou  $P_p$ , les données sont dispersées. En revanche, en traçant ces mêmes données selon l'analyse dimensionnelle  $\tau/P_p = \mu(J)$  et  $\phi = \phi(J)$ , on constate que l'ensemble des données obtenues selon les différents protocoles se regroupent sur des courbes maîtresses, voir figures 3.4 c et d. Ces résultats sont importants car :

- le bon accord entre les mesures 'stationnaires' et 'dynamiques' montrent que les rampes dynamiques sont effectuées suffisamment lentement pour que la suspension soit à chaque instant dans un état quasi-stationnaire,
- ils confirment que pour une suspension 'classique' Newtonienne, le nombre visqueux  $J$  est bien le paramètre de contrôle du système,
- enfin, et c'est le point le plus important pour ce chapitre, ces résultats valident la preuve de concept du Capillarytron en montrant que l'interface capillaire air/suspension permet de contrôler la pression granulaire afin d'accéder à la rhéologie frictionnelle de la suspension.

De manière plus spécifique, la figure 3.4c montre que le coefficient de friction macroscopique  $\mu$  est bien décrit par une loi de puissance  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$ , avec un coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c = 0.292 \pm 0.004$ , un exposant de la loi de puissance  $\alpha_\mu = 0.50$  et un coefficient  $A = 3.05$ . On peut remarquer que le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  et la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  ne dépendent pas de la pression granulaire  $P_p^z$ . Pour cette suspension, les contacts frictionnels entre particules suivent donc une loi de type Coulombienne pour laquelle, dans la gamme de pression explorée, le coefficient de friction est indépendant de la pression appliquée. L'insert de la figure, montrant la sur-friction  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  versus  $J$  en échelle logarithmique, permet d'apprécier l'adéquation entre les données expérimentales et la loi de puissance en  $J^{0.5}$  sur 5 décades, qui de façon assez surprenante fonctionne très bien même pour des valeurs du nombre visqueux  $J$  assez élevées. La valeur de l'exposant mesurée  $\alpha_\mu = 0.50$  est ainsi en très bon accord avec les prédictions théoriques récentes de DeGiuli *et al.* [29] ( $\alpha_\mu = 0.50$ ) censé initialement ne décrire que la limite proche du jamming ( $J \rightarrow 0$ ).

Les mesures obtenues avec le Capillarytron sont aussi en bon accord avec des mesures récentes de Tapia *et al.* [22] qui reporte  $\alpha_\mu = 0.50$ , et Perrin *et al.* [39], qui reporte  $\alpha_\mu = 0.7 \pm 0.3$ . La valeur du coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c = 0.292 \pm 0.004$  est légèrement inférieure à celle obtenue par Boyer *et al.* ( $\mu_c = 0.32$ ), ou encore Tapia *et al.* et Perrin *et al.* ( $\mu_c \simeq 0.35$ ). Cette valeur n'est toutefois pas supposée être universelle, car elle dépend du coefficient de friction microscopique entre particules et de leur géométrie.

La figure 3.4d montre que l'évolution de la fraction volumique  $\phi$  est bien décrite par la loi  $\phi(J) = \phi_J / (1 + BJ^{\alpha_\phi})$ , avec  $\phi_J = 0.570 \pm 0.003$ ,  $\alpha_\phi = 0.45$  et  $B = 1.15$ . La fraction volumique réduite  $\Delta\phi = \phi_J - \phi$  est représentée dans l'insert en échelle logarithmique. Cette représentation permet d'illustrer la loi de puissance en  $\propto J^{0.45}$  valable pour les plus faibles valeurs de  $J$ . L'exposant  $\alpha_\phi = 0.45$  mesuré ici est une nouvelle fois cohérent avec les prédictions théoriques récentes de DeGiuli *et al.* [29] ( $\alpha_\phi = 0.50$ ), ainsi qu'avec les mesures récentes de Tapia *et al.* [22] ( $\alpha_\phi = 0.50$ ). La valeur de la fraction volumique de jamming  $\phi_J = 0.570 \pm 0.003$  est légèrement plus faible que les mesures existantes pour des particules macroscopiques frottantes et sphériques : Boyer *et al.* [20], et Tapia *et al.* [22] trouvent plutôt  $\phi_J = 0.58\%$ , mais l'écart reste raisonnable. Une piste qui permet d'expliquer la valeur un peu faible de la fraction volumique de jamming mesurée est la présence du filtre de  $220 \mu\text{m}$  utilisé pour rendre le plateau inférieur rugueux. Ce filtre crée une zone où les particules ne peuvent pas aller, mais où le fluide peut se loger. La fraction volumique effective peut ainsi être légèrement sous-estimée.

Les résultats présentés ci-dessous montrent que le Capillarytron en mode *pression imposée* donne accès à la rhéologie frictionnelle d'une suspension 'classique' Newtonienne. Les mesures issues de différents protocoles : stationnaire, dynamique, obtenues pour différentes pressions granulaires, en variant soit  $\dot{\gamma}$  à  $P_p$  constant ou  $P_p$  à  $\dot{\gamma}$  constant, se superposent toutes sur les courbes maitresses attendues  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$ . Ces courbes sont très bien décrites par les lois suivantes  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$  et  $\phi(J) = \phi_J / (1 + BJ^{\alpha_\phi})$  sur toute la plage de  $J$  explorée, et les valeurs des différents coefficients et exposants sont globalement cohérents avec la littérature. Nous pouvons également souligner que les mesures de rhéologie frictionnelle réalisées avec ce nouveau rhéomètre couvrent une très grande plage (environ 7 décades) de nombre visqueux  $J$ .

### 3.4 Comparaison *Volume imposé* versus *Pression imposée*

Il est à présent intéressant de superposer les résultats des mesures obtenues dans les deux configurations *Volume imposé* et *Pression imposée*, afin de vérifier leur accord et d'identifier les plages de mesures pour chacune des configurations.

La figure 3.5 rassemble l'ensemble des données obtenues à volume imposé (issues de la figure 3.2) et à pression imposée (issues de la figure 3.4). Les figures 3.5a et 3.5b présentent respectivement les viscosités de cisaillement  $\eta_s(\phi)$  et normale  $\eta_n(\phi)$ . Les valeurs de viscosité de la suspension peuvent être déduites de la rhéologie frictionnelle obtenue à pression imposée en utilisant le fait que  $\eta_s \equiv \mu/J$  et  $\eta_n \equiv 1/J$ . Les deux types de mesure donnent des résultats remarquablement similaires. On peut toutefois remarquer une petite différence

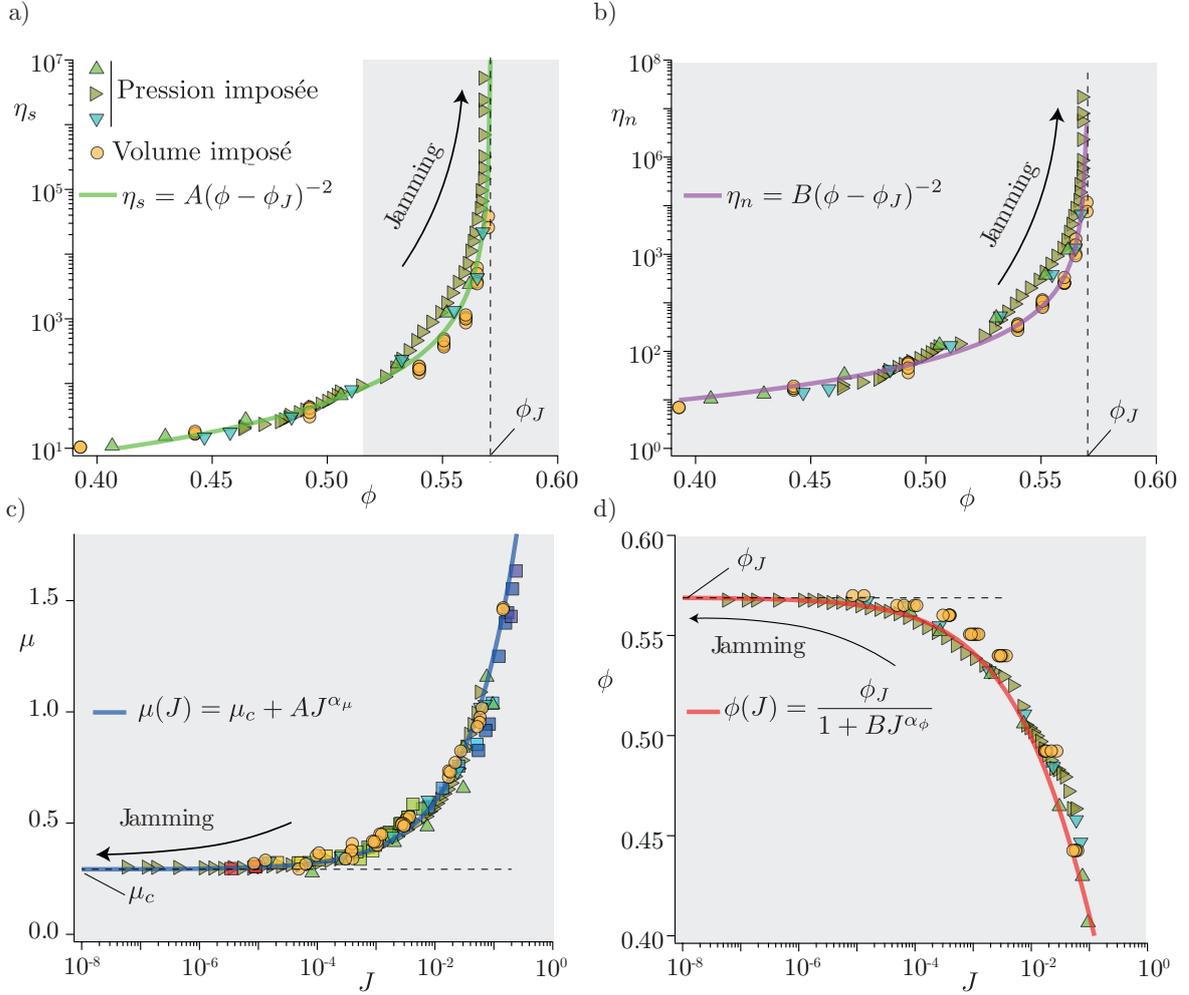


FIGURE 3.5 – Comparaison *Volume imposé* versus *Pression imposée*. a) Viscosité de cisaillement  $\eta_s$  versus fraction volumique  $\phi$ . Fit :  $\eta_s(\phi) = A(\phi - \phi_J)^{-2}$  avec  $A=0.26$  et  $\phi_J = 0.571 \pm 0.003$ . b) Viscosité normale  $\eta_n$  versus fraction volumique  $\phi$ . Fit :  $\eta_n(\phi) = B(\phi - \phi_J)^{-2}$  avec  $B=0.31$  et  $\phi_J = 0.570 \pm 0.003$ . c) Coefficient de friction macroscopique  $\mu$  versus nombre visqueux  $J$ . Fit :  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$ , avec  $\mu_c = 0.292 \pm 0.004$ ,  $\alpha_\mu = 0.5$  et  $A = 3.05$ . d) Fraction volumique  $\phi$  versus nombre visqueux  $J$ . Fit :  $\phi(J) = \phi_J / (1 + BJ^{\alpha_\phi})$  avec  $\phi_J = 0.570 \pm 0.003$ ,  $\alpha_\phi = 0.45$ , et  $B = 1.15$ . Zones sur-lignées en gris : mesures généralement inaccessibles en rhéométrie conventionnelle.

entre les fractions volumiques de jamming mesurées à volume imposé et à pression imposée. La différence observée est de l'ordre de  $\delta\phi_J = 0.002$ . Cela peut s'expliquer car la mesure de la fraction volumique  $\phi$  à pression imposée repose sur l'hypothèse que le ménisque est plat et que l'échantillon garde une symétrie parfaitement cylindrique, or en pratique la courbure macroscopique du ménisque peut varier le long de la direction ortho-radiale. À volume imposé par contre, la fraction volumique est directement contrôlée via la seringue. On remarque également que la mesure à pression imposée avec le protocole 'dynamique' permet de sonder le système bien plus proche du jamming qu'à volume imposé. En effet, les viscosités de cisaillement et normale, qui varient comme  $\propto (\phi - \phi_J)^{-2}$ , atteignent des valeurs environ deux ordres de grandeur supérieures à celle obtenue à volume imposé.

Les figures 3.5c et 3.5d présentent la rhéologie frictionnelle issue des mesures à volume imposé et pression imposée. Les mesures du coefficient macroscopique de friction  $\mu$  en fonction du nombre visqueux se superposent très bien, cf. figures 3.5c. On peut ajuster l'ensemble des données issues de toutes ces expériences, avec les différents protocoles à pression imposée et à volume imposé, à la loi  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$ , avec  $\mu_c = 0.292 \pm 0.004$ ,  $\alpha_\mu = 0.5$  et  $A = 3.05$ . On voit également sur ces figures que la configuration pression imposée permet d'aller plus proche du jamming en atteignant un nombre visqueux de l'ordre de  $J = 5.10^{-8}$  contre  $J = 1.10^{-5}$  à volume imposé. Cela peut se comprendre car à pression imposée, on contrôle directement le nombre visqueux  $J = \eta_f \dot{\gamma} / P_p^z$ . Le nombre visqueux minimal  $J$  est alors déterminé par la vitesse minimale et la pression maximale que l'on peut imposer avec le rhéomètre. À volume imposé, il est plus difficile de sonder la rhéologie très proche du jamming car il faut directement préparer l'échantillon très proche de la fraction volumique de jamming en soutirant exactement la bonne quantité de fluide, ce qui est difficile expérimentalement. Les données issues des deux configurations se regroupent aussi très bien pour le comportement de  $\phi(J)$ , cf. figures 3.5d. On remarque là aussi un léger décalage en  $\phi$ , probablement dû, comme expliqué ci-dessus, à la difficulté d'estimer précisément la valeur absolue de  $\phi$  lors des mesures à pression imposée. Globalement, l'ensemble des données peut être bien fitté par la loi  $\phi(J) = \phi_J / (1 + BJ^{\alpha_\phi})$  avec  $\phi_J = 0.570 \pm 0.002$ ,  $\alpha_\phi = 0.45$ , et  $B = 1.15$ .

J'ai sur-ligné en gris les mesures qui ne sont généralement pas accessibles en rhéométrie conventionnelle. On voit ici l'apport du Capillarytron qui donne accès à un grand nombre d'informations supplémentaires :

- D'abord, grâce à la seringue, le Capillarytron en mode volume imposé permet d'accéder à la viscosité de suspensions très concentrées, permettant d'atteindre des fractions volumiques à seulement quelques fractions de pourcent de la fraction volumique de jamming, cf. figure 3.5a.
- Ensuite, la connaissance de la pression fluide donne accès à la pression granulaire. Cela permet de mesurer la seconde loi constitutives des suspensions granulaires,  $\eta_n(\phi)$ , cf. figure 3.5b.
- Enfin, le Capillarytron permet de caractériser la rhéologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  de la suspension, et en mode pression imposée d'étendre les mesures encore plus proche du jamming, cf. figures 3.5c et 3.5d. On verra dans le chapitre suivant que cette information est cruciale pour caractériser le comportement frictionnel des suspensions

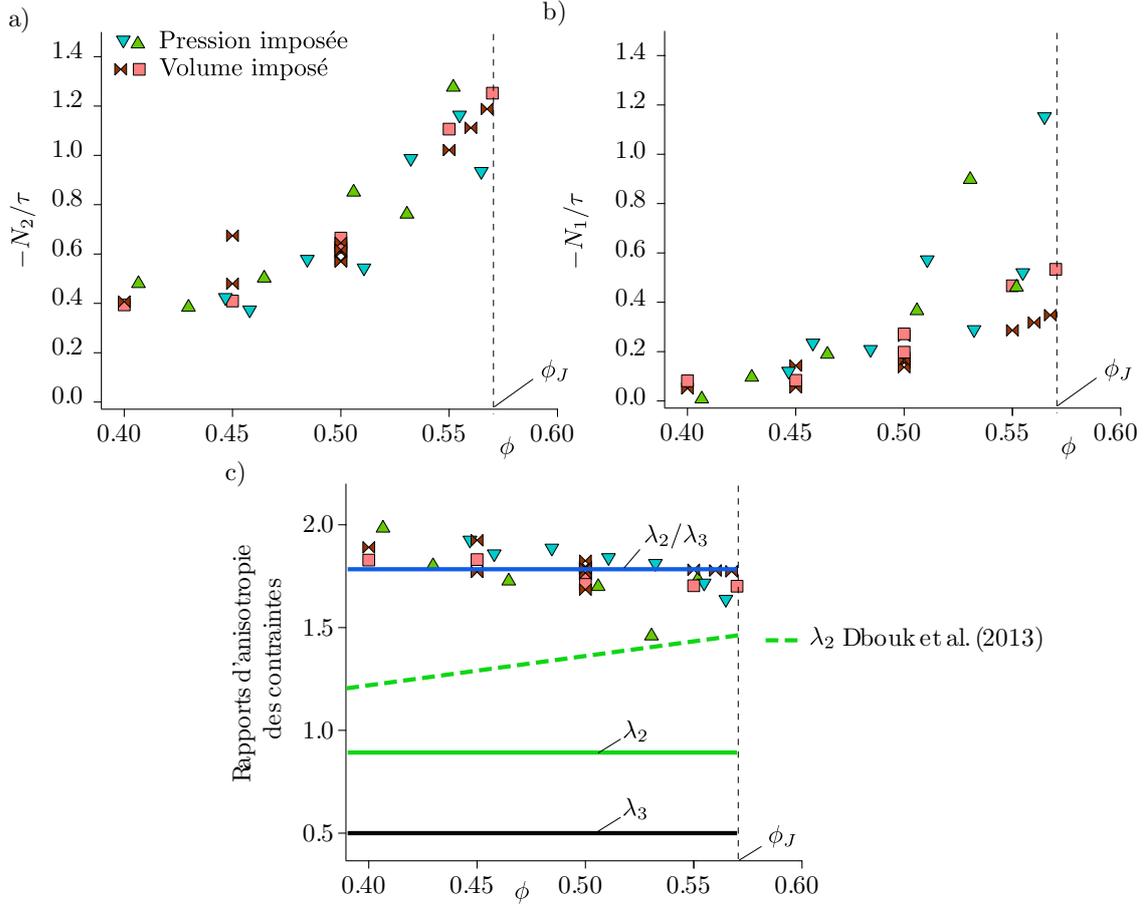


FIGURE 3.6 – Différence de contraintes normales et anisotropie des contraintes. Différences de contrainte normales a)  $-N_2/\tau$  versus fraction volumique  $\phi$  et b)  $-N_1/\tau$  versus fraction volumique  $\phi$ . c) Rapports d’anisotropie des contraintes mesuré  $\lambda_2/\lambda_3 \approx 1.8$  et estimés  $\lambda_2 \approx 0.9$ ,  $\lambda_3 = 0.5$  versus fraction volumique  $\phi$ . Pointillé vert : loi empirique de Djouk et al. pour  $\lambda_2$  [21].

rhéo-épaississantes. Pour le cas de la suspension ‘classique’ Newtonienne étudiée jusqu’ici, on a pu montrer que le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  et la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  ne dépendent pas de la pression granulaire  $P_p^z$ . Pour cette suspension, les contacts frictionnels entre particules semble donc suivent une loi de type Coulombienne pour laquelle, dans la gamme de pression explorée, le coefficient de friction est indépendant de la pression appliquée.

### 3.5 Différences de contraintes normales et anisotropie des contraintes

Nous avons vu en section 2.1 que le Capillarytron permet de mesurer la pression granulaire dans les directions normale  $P_p^z$  et radiale  $P_p^r$ . On a donc directement accès à la seconde différence de contraintes normales  $N_2 \equiv \sigma^2 - \sigma^3 = P_p^r - P_p^z$ . De plus, comme il n’y a pas de migration dans la configuration plan/plan utilisée, ce que nous avons pu valider avec la

technique de visualisation, cf. §2.2.7, nous pouvons en déduire la pression granulaire dans la direction ortho-radiale  $P_p^\theta$  grâce à la relation  $P_p^\theta = 2P_p^r$ . Ainsi, nous avons accès de manière indirecte à la première différence de contraintes normales  $N_1 \equiv \sigma^1 - \sigma^2 = P_p^z - P_p^\theta$ .

Dans cette section, je rapporte les résultats obtenus avec le Capillarytron concernant le comportement des différences de contraintes normales et je les compare à ceux obtenus par d'autres méthodes ou dans d'autres configurations. La figure 3.6a montre le rapport  $-N_2/\tau$  en fonction de la fraction volumique  $\phi$ . Ces mesures indiquent que la seconde différence de contrainte normale est négative, et que le rapport  $|N_2|/\tau$  augmente avec la fraction volumique  $\phi$ . Le signe de  $N_2$  et sa variation avec la fraction volumique est cohérente avec la littérature. On peut par exemple citer les résultats obtenus dans le cadre de la Dynamique Stockesienne [87], l'expérience en configuration plan/plan de Dbouk *et al.* [21] ou l'expérience de Couturier *et al.* qui utilise la déformation de l'interface air-suspension dans une configuration canal incliné [88]. D'autres exemples suivant les même tendances sont donnés dans la review récentes de Guazzelli et Pouliquen (2018) [16]. De même, on reporte sur la figure 3.6b le rapport  $-N_1/\tau$  en fonction de la fraction volumique  $\phi$ . Ces mesures indiquent que la première différence de contraintes normales  $N_1$  est elle-aussi négative, et que le rapport  $|N_1|/\tau$  augmente de façon monotone avec la fraction volumique  $\phi$ . Le signe négatif de  $N_1$  est compatible avec plusieurs d'études [16], mais d'autres rapportent un  $N_1$  positif [21]. Cette différence entre les résultats présentés ici et ceux de Dbouk *et al.* (2013) est surprenante car nos deux configurations et méthodes de mesures sont relativement similaires, cf. § 1.9. Il est également intéressant de mentionner que nous observons un comportement monotone pour  $-N_1/\tau$  avec  $\phi$ , alors que des simulations numériques discrètes récentes d'une suspension Newtonienne constituée de grains frottants indiquent que le rapport  $-N_1/\tau$  ( $\phi$ ) est croissant jusqu'à environ  $\phi \simeq \phi_J - 0.12$ , puis décroît jusqu'au jamming, changeant même de signe pour devenir négatif lorsque  $\phi \simeq \phi_J - 0.05$  [89]. Nous n'observons pas de tels comportements non-monotones alors que la gamme de fractions volumiques explorée couvrent les valeurs de fractions volumiques pour lesquels ces comportements sont reportés.

D'autres quantités intéressantes à mesurer sont les rapports d'anisotropie des contraintes granulaires. On les définit en suivant les même notations que Dbouk *et al.* (2013) [21] tel que  $\lambda_2 \equiv \sigma_p^2/\sigma_p^1 = P_p^z/P_p^\theta$  et  $\lambda_3 \equiv \sigma_p^r/\sigma_p^\theta = P_p^r/P_p^\theta$ . On peut aussi définir le rapport  $\lambda_2/\lambda_3 = P_p^z/P_p^r$  auquel on a directement accès et qui est intéressant car il compare la pression granulaire dans la direction verticale  $P_p^z$  (qui intervient dans le nombre visqueux  $J = \eta_f \dot{\gamma}/P_p^z$  et dans le coefficient macroscopique de friction  $\mu = \tau/P_p^z$ ) à la pression granulaire dans la direction radiale  $P_p^r$  (que l'on impose grâce à l'interface capillaire air/suspension). Contrairement à Dbouk *et al.* (2013), nous ne sommes pas capable de mesurer directement  $\lambda_2$  et  $\lambda_3$ . On peut cependant à nouveau utiliser le fait que pour une suspension Newtonienne sans migration on a  $P_p^\theta = 2P_p^r$  et ainsi en déduire le rapport  $\lambda_2 = P_p^z/2P_p^r$  et  $\lambda_3 = 1/2$ .

La figure 3.6c montre les rapports d'anisotropie des contraintes  $\lambda_2$ ,  $\lambda_3$  et  $\lambda_2/\lambda_3$  ainsi mesurés et/ou estimés en fonction de la fraction volumique. Le rapport mesuré  $\lambda_2/\lambda_3 = P_p^z/P_p^r$  est légèrement décroissant, mais au vue des incertitudes de mesures, on l'estimera constant avec pour valeur moyenne  $\lambda_2/\lambda_3 \approx 1.8$ . Ainsi, pour revenir au principe de fonctionnement du Capillarytron, imposer une pression du liquide  $P_\ell = -\rho_f g H = P_p^r(r = R)$  revient à imposer

une pression granulaire dans la direction verticale proportionnelle à  $\rho_f g H$  selon

$$\bar{P}_p^z = \frac{\lambda_2}{\lambda_3} \bar{P}_p^r = \frac{\lambda_2}{\lambda_3} \times \frac{2}{3} \rho_f g H \simeq 1.2 \rho_f g H, \quad (3.2)$$

quelque soit la fraction volumique. On voit ici le lien direct entre la pression imposée par l'interface capillaire et la pression granulaire résultante dans la direction verticale. Le rapport d'anisotropie  $\lambda_2 = P_p^z / 2P_p^r = 1.8/2 = 0.9$  estimé est par conséquent lui aussi quasi-indépendant de la fraction volumique. Ce résultat est différent de Dbouk *et al.* (2013) qui proposent la courbe empirique  $\lambda_2 = 1.44\phi + 0.665$ , cf. courbe pointillée verte de la figure 3.6c.

### 3.6 Difficultés expérimentales rencontrées

Les résultats présentés dans ce chapitre correspondent aux résultats finaux, obtenus après maints raffinements du dispositif expérimental, variations sur les protocoles de mesures et évidemment de multiples échecs ! Dans la suite, je répertorie quelques points qui ont été importants dans le processus qui a conduit à l'obtention de ces résultats et au bon fonctionnement du Capillarytron.

**Stabilité de l'interface capillaire et mesure de  $\phi$  :** Dans toutes les expériences réalisées, on connaît la masse initiale de suspension déposée dans l'entrefer. Le suivi de l'évolution de la fraction volumique se fait grâce à cette référence initiale, soit en considérant le volume de liquide retiré avec la seringue à volume imposé, soit en suivant l'évolution de l'entrefer  $h$  à pression imposée. Il est donc crucial de ne pas perdre le moindre volume de suspension tout au long de l'expérience et éviter absolument toute éjection de suspension. Sans cela, si la suspension déborde, le volume de particule n'est alors plus connu et il faut recommencer l'expérience à zéro. Pour éviter ce problème, outre le fait d'être très attentif afin d'éviter de solliciter la suspension à de trop grandes vitesses et/ou contraintes, il est important de bien stabiliser l'interface capillaire :

- Pour cela, j'ai premièrement utilisé un coating hydrophobe (NeverWet) très efficace, mais dont l'inconvénient est sa faible résistance à l'usure et aux nettoyages successifs du dispositif. Refaire le coating prend du temps car cela nécessite de démonter le plateau inférieur qu'il faut ensuite re-aligner etc... Nous avons finalement opté pour une autre solution afin de stabiliser l'interface, simplement en biseautant à  $45^\circ$  les bords des deux plateaux, comme représenté sur la figure 2.3.
- Le tamis inférieur occupait initialement toute la surface du plateau de 50 mm de diamètre. Le problème est qu'à sa périphérie, les fils du tamis ont tendance à sortir de leur maille, ce qui peut aussi déstabiliser l'interface capillaire et induire l'éjection de suspension. Pour éviter ce problème, nous avons découpé le tamis à un diamètre de 46 mm et usiné pour le tamis un emplacement dans le plateau. Cette configuration permet de laisser les bords du plateau libre et bien biseauté afin d'accrocher au mieux l'interface capillaire.

**Vieillessement de la suspension :** La suspension ‘classique’ Triton X-100/particules de PMMA, bien Newtonienne juste après sa préparation, devient rhéo-fluidifiante si on laisse les particules immergées dans le Triton X100 trop longtemps (typiquement plusieurs semaines). Il est donc important de renouveler la suspension régulièrement à partir de billes neuves, ce qui nécessite de longues et fastidieuses séances de tamisage.

**Capteur de pression fluide :** Le capteur de pression différentiel est très précis ( $\pm 1$  Pa) car sa plage totale de mesure est relativement réduite ( $\pm 300$  Pa). Il est donc très fragile et très facile de détruire sa membrane, par exemple en retirant du fluide à l’aide de la seringue qui génère des pressions fluides importantes dans tout le dispositif ! Il faut alors le remplacer et effectuer la calibration d’un nouveau capteur. Afin d’éviter ces accidents, j’ai placé une valve à l’entrée du capteur de pression, que l’on ferme à chaque fois que l’on utilise la seringue.

**Plateau supérieur rugueux :** La réalisation d’un plateau supérieur rugueux bien centré par rapport à l’axe de rotation du rhéomètre, et perpendiculaire à ce dernier nous a pris beaucoup de temps. Les techniciens du laboratoire ont dû recommencer l’usinage plusieurs fois car le parallélisme n’était pas satisfaisant. La méthode qui a donné le plus de succès consiste à monter la matière (bloc de PMMA ou plateau lisse d’Anton-Paar) sur la tige universelle du rhéomètre. Le tout est monté sur le tour pour réaliser un plateau lisse biseauté. Enfin, sans jamais enlever le plateau de la tige afin de conserver le centrage, on réalise la rugosité du plan avec la fraiseuse numérique.

**Rhéomètre Anton-Paar :** Une limitation importante du rhéomètre Anton-Paar est que l’on ne peut pas modifier en temps réel la vitesse de rotation de la tige. Cette contrainte est particulièrement limitante. Il faut en effet prévoir, avant de faire la mesure, le temps durant lequel la vitesse de rotation doit rester constante. Pour les mesures stationnaires par exemple, ce temps doit être suffisamment grand pour que le système puisse bien atteindre son état stationnaire. Choisir ces temps est particulièrement difficile en configuration pression imposée, où les transitoires peuvent être longs.

Une autre limitation sont les sorties analogiques du rhéomètre que j’ai un temps utilisé afin d’enregistrer sur LabView les signaux de couple et de vitesse de la tige. Pour atteindre la gamme de mesure donnée par le rhéomètre (typiquement 6 décades de dynamique), j’ai mis en place un système utilisant pour la même variable plusieurs sorties assujetties à des gains différents. J’ai travaillé plusieurs semaines à tenter de faire correspondre les signaux enregistrés à ceux fournis par le logiciel Rheocompass, jusqu’à me rendre compte que ces signaux analogiques de sortie ne sont pas de bonne qualité et qu’une partie de l’information est perdue. La solution finale, moins pratique, est de directement enregistrer les signaux de couple et de vitesse donnés par le logiciel RhéoCompass une fois l’expérience terminée.

### 3.7 Conclusion

Étudier la rhéologie d’une suspension ‘classique’ Newtonienne m’a permis dans ce chapitre de valider la preuve de concept du Capillarytron. Les résultats présentés ici montrent en effet qu’il est possible, en géométrie plan/plan, d’imposer la pression granulaire en utilisant l’interface capillaire air/suspension, et ainsi d’accéder à la rhéologie frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  de la suspension.

L’ensemble des mesures réalisées à volume imposé et à pression imposée, utilisant divers protocoles stationnaire, dynamique, variant  $\dot{\gamma}$  à  $P_p$  constant ou inversement, se regroupent toutes sur les mêmes courbes, donnant accès aux lois constitutives de la suspension :

Viscosités	Rhéologie frictionnelle
$\eta_s(\phi) = 0.26(\phi_J - \phi)^{-2}$	$\mu(J) = \mu_c + 3.05J^{0.5}$
$\eta_m(\phi) = 0.31(\phi_J - \phi)^{-2}$	$\phi(J) = \phi_J / (1 + 1.15J^{0.45})$

avec  $\phi_J = 0.571 \pm 0.003$ ,  $\mu_c = 0.292 \pm 0.004$ . Ces résultats appellent plusieurs commentaires. D’abord la forme de ces lois constitutives, en loi de puissance simple de  $(\phi_J - \phi)$  ou de  $J$ , sont directement inspirées des formes théoriques proposées par DeGiuli *et al.* (2015) [29] pour décrire la limite  $J \rightarrow 0$ . Il est assez remarquable que ces lois fonctionnent très bien et cela même pour des valeurs de  $J$  relativement grandes. Les données sont en effet très bien fittées par ces lois sur une très large gamme de  $J \in [10^{-7} - 0.3]$ , ou de manière équivalente de  $\phi \in [0.40 - 0.57]$ , cf. figure 3.5. Il est intéressant de remarquer que ces données, obtenues il y a presque deux ans durant la première moitié de ma thèse, sont très robustes. En effet, à l’occasion du stage de Master d’Antoine Arnautou ce printemps 2022, et pour le former sur l’utilisation du Capillarytron, nous avons repris l’ensemble de ces mesures et obtenus des résultats quasi-identiques! Enfin, comme déjà mentionné plus haut, les lois constitutives obtenues sont globalement en très bon accord avec la littérature aussi bien expérimentale [16, 20, 21, 39], que numérique et théorique [10, 23, 29].

**Qu’est ce qui ne fonctionne pas?** Le chapitre ci-dessus laisse un certain nombre de questions et pistes de réflexions ouvertes :

Tout d’abord, l’origine du comportement rhéo-fluidifiant que nous avons observé sur la plupart de nos suspensions de particules ‘macroscopiques’ reste encore assez peu claire, tout comme la raison du caractère quasi-Newtonien de la combinaison particules de PMMA + Triton X-100. L’hypothèse d’une friction inter-particulaire dépendant des contraintes, comme proposé récemment par Lobry *et al.* [63], semble ne pas s’appliquer ici, car nous mesurons bien le même coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c \approx 0.3$  (qui reflète la friction inter-particules) quelque soit la pression appliquée (ici 10 et 100 Pa). L’hypothèse de la présence de forces d’adhésions semble raisonnable, mais leur origine n’est pas encore claire.

On peut ensuite discuter des différences entre les diverses lois rhéologiques frictionnelles

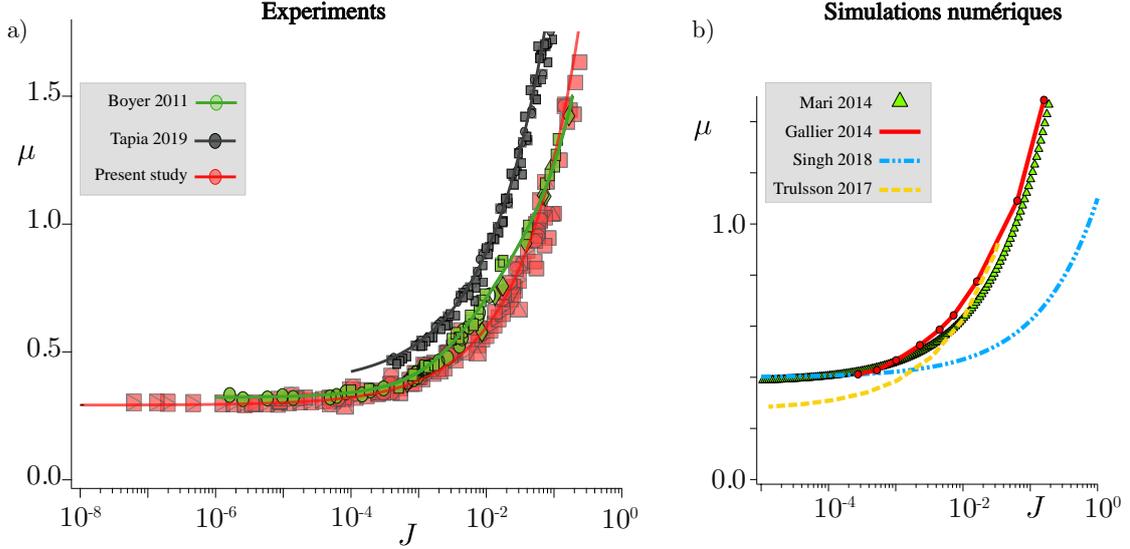


FIGURE 3.7 – Comparaison des lois  $\mu(J)$  proposées dans la littérature. a) Mesures expérimentales à pression imposée, Fits : (Boyer 2011)  $\mu = \mu_1 + \frac{\mu_0 - \mu_1}{1 + I_0/J} + J + 5\phi_J J^{0.5}/2$  [20], (Tapia 2019)  $\mu(J) = 0.37 + 5.45J^{0.5}$  [22], (notre étude)  $\mu(J) = 0.29 + 3.05J^{0.5}$ . b) Simulations numériques issues de [24, 90–92].

reportées dans la littérature. Pour faire une comparaison quantitative, j’ai superposé sur la figure 3.7a les lois  $\mu(J)$  obtenues précédemment par Boyer *et al.* (2011) [20] et Tapia *et al.* (2019) [22], à celle que j’ai pu mesurer avec le Capillarytron. Les systèmes étudiés sont pour l’étude de Boyer *et al.* sphères de PMMA immergées dans poly(éthylène glycol-ranpropylène glycol) monobutylether ou dans un mélange Triton X-100/eau/ZnCl<sub>2</sub>, et pour pour Tapia *et al.* sphères de polystyrène immergées dans du poly(éthylène glycol-ranpropylène glycol) monobutylether. Globalement l’accord est satisfaisant, mais si l’on regarde de plus près, pour le fit en  $\mu(J) = \mu_c + CJ^{0.5}$ , Tapia *et al.* reporte  $C = 5.45$ , alors que je trouve  $C = 3.05$ . On pourrait imputer ces différences aux géométries utilisées : annulaire dans le cas de Tapia, contre plan/plan pour le Capillarytron. Mais les données de Boyer *et al.* sont plus proches des données obtenues avec le Capillarytron, alors qu’eux aussi utilisait une géométrie annulaire. De même, la valeur de  $\phi_J$  peut varier d’une étude à l’autre, car bien souvent l’estimation de l’amplitude absolue de  $\phi_J$  est rendue difficile par les conditions aux limites (rugosité) mal contrôlées, qui induisent une incertitude sur la valeur de l’entrefer  $h$  (sans compter que  $\phi_J$  n’a pas de raison d’avoir une valeur universelle car elle dépend, comme  $\mu_c$ , de la friction interparticulaire). Enfin, on remarque sur la figure 3.7b que les données récentes issues des simulations numériques ne s’accordent pas encore très bien sur une loi  $\mu(J)$  unique. Il serait intéressant d’approfondir ce point afin de mieux converger vers une définition universelle de cette loi.

Si le Capillarytron a été conçu pour explorer la rhéologie de suspensions composées de particules de petites tailles, une de ses limites évidente est qu’il n’est pas adapté aux très grosses particules. En particulier, l’entrefer maximum est typiquement de 3 mm, ce qui assure 25 diamètres de particules sur l’entrefer, ici avec  $d = 120 \mu\text{m}$ . Étudier la rhéologie de suspen-

sion de particules plus grandes s'accompagnerait certainement d'effets de taille finie et/ou de confinement.

**Quels sont les atouts du Capillarytron ?** Le premier atout majeur est sans doute que, du fait que la pression granulaire soit imposée par l'interface capillaire air/suspension, le Capillarytron permet de sonder la rhéologie frictionnelle de suspensions dont la taille des particules est très petite. Le second est la gamme dynamique accessible à la mesure, autant pour le nombre visqueux  $J$  que pour la fraction volumique  $\phi$ . Le Capillarytron donne accès aux quantités rhéologiques d'intérêts à la fois très proche du jamming ( $J \approx 5 \times 10^{-8}$ ), mais aussi pour des fractions volumiques relativement faibles (40%). C'est un atout pour déterminer avec précision la valeurs des exposants et la valeur de  $\phi_J$ . Enfin, le Capillarytron fonctionne aussi bien à volume imposé qu'à pression imposée. Cela donne une grande flexibilité d'utilisation en fonction de la caractérisation souhaitée et du système que l'on étudie. Le mode pression imposée permet de faire varier le nombre visqueux  $J$  et la pression granulaire  $P_p$  indépendamment. On va voir, dans le chapitre suivant qui traite de la rhéologie de suspensions rhéo-épaississantes, que cet aspect constitue un atout majeur pour sonder leur comportement frictionnel qui dépend alors de deux nombres sans dimensions  $J$  et  $P_p/P^*$ .

---

## Rhéologie frictionnelle de suspensions rhéo-épaississantes

---

Après avoir imaginé et développé le Capillarytron puis établi sa preuve de concept sur une suspension macroscopique dans les chapitres précédents, nous sommes en mesure d'aborder la question centrale de ma thèse : la détermination expérimentale de la rhéologie frictionnelle d'une suspension rhéo-épaississante. Nous avons vu dans l'introduction que de telles suspensions sont composées de particules de taille micrométrique (typiquement inférieure à quelques dizaines de microns), de sorte que les forces colloïdales commencent à jouer un rôle important sur la nature frictionnelle ou non des forces de contact. Le Capillarytron a été précisément conçu pour caractériser de telles suspensions colloïdales, l'interface capillaire air/suspension qui impose la pression particulaire étant d'autant plus résistante que les particules sont petites. Dans ce chapitre, je présente les principaux résultats obtenus après de nombreux essais infructueux, grâce à l'utilisation d'une suspension rhéo-épaississante modèle de micro-billes de silice dans des solutions aqueuses. Avant de décrire les expériences, je discute dans un premier temps les lois constitutives attendues  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  pour une suspension rhéo-épaississante, en étendant le modèle de transition frictionnelle de Wyart et Cates à l'approche pression imposée. L'existence d'une force répulsive courte portée  $F_{\text{rep}}$  entraîne l'existence d'un nouveau nombre sans dimension dans les lois constitutives  $P_p/P^*$ , où  $P_p$  est la pression particulaire et  $P^* \sim F_{\text{rep}}/d^2$  est l'échelle de pression de répulsion critique. Je présente ensuite les premières mesures que j'ai effectuées sur une suspension de Maïzena, qui ont été déterminantes pour mettre au point la version finale du dispositif présentée au Chapitre 2. Enfin, je présente les expériences réalisées avec la suspension modèle de silice, qui constituent la première caractérisation de la rhéologie frictionnelle d'une suspension colloïdale. La dernière section décrit les expériences que j'ai réalisées à la fin de ma thèse pour montrer la versatilité du Capillarytron sur des suspensions complexes variées (amidon de pomme de terre, suspensions Browniennes de silice, particules fonctionnalisées) et constitue une ouverture pour des travaux futurs.

## 4.1 Le modèle de transition frictionnel à pression imposée

Le modèle de transition frictionnel de Wyart et Cates présenté au Chapitre § 1.3.3 a été originellement écrit dans un formalisme à volume imposé, c'est-à-dire pour une suspension de fraction volumique fixe. Il permet de prédire l'évolution de la contrainte de cisaillement  $\tau$  et de la viscosité  $\eta$  de la suspension en fonction du taux de cisaillement imposée, cf. figure 1.21. Pour rappel, ce modèle introduit une fraction volumique de jamming  $\phi_J(f)$  qui suit une loi de mélange interpolant les fractions volumiques critiques d'un système non-frottant  $\phi_0$  et frottant  $\phi_1$ , selon

$$\phi_J(f) = (1 - f)\phi_0 + f\phi_1, \quad (4.1)$$

où  $f$  est la fraction de contact frictionnel, qui varie avec la contrainte appliquée  $\tau$  selon

$$f(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau_c}{\tau}\right), \quad (4.2)$$

où  $\tau_c$  est la contrainte critique reliée aux interactions répulsives à courte portée entre les particules.

Dans l'article original de Wyart et Cates [51], les auteurs ne font pas de distinction entre la contrainte de cisaillement  $\tau$  et la contrainte normale  $P_p$ . Ils supposent en effet pour simplifier que  $\tau \sim P_p$  et néglige la dépendance en  $\phi$  du coefficient de friction  $\mu = \tau/P_p$ , ce qui revient à supposer que la viscosité de cisaillement  $\eta_s$  et la viscosité normale  $\eta_n$  sont identiques. Pour étendre ce modèle à une approche à pression imposée, nous devons écrire les deux relations constitutives fixant la contrainte de cisaillement  $\tau$  et la fraction volumique  $\phi$  en fonction des paramètres de contrôle du problème que sont le nombre visqueux  $J$  et la pression particulaire adimensionnée  $P_p/P^*$ . Pour cela, nous suivons l'esprit du modèle de transition frictionnelle et écrivons une loi de mélange à la fois pour la fraction volumique de jamming  $\phi_J$  et pour le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  :

$$\begin{aligned} \phi_J(f) &= (1 - f)\phi_0 + f\phi_1, \\ \mu_c(f) &= (1 - f)\mu_0 + f\mu_1, \end{aligned} \quad (4.3)$$

avec  $\mu_0$  et  $\mu_1$  qui correspondent respectivement au coefficient de friction quasi-statique d'une suspension non-frottante et frottante. Par ailleurs, la fraction de contacts frictionnels est à présent fixée, non pas par la valeur de la contrainte de cisaillement comme dans l'équation (4.2), mais par la valeur de la pression granulaire selon <sup>1</sup>

$$f(P_p/P^*) = \exp\left(-\frac{P^*}{P_p}\right). \quad (4.4)$$

Dans ces conditions, on peut simplement exprimer la rhéologie frictionnelle attendue d'une suspension rhéo-épaississante selon les lois

$$\mu(J, P_p/P^*) = \mu_c(P_p/P^*) + AJ^{1/2} \quad (4.5)$$

1. Remarquons que c'est également sur la pression granulaire, et non sur  $\tau$ , que Wyart et Cates ont raisonné dans leur article.

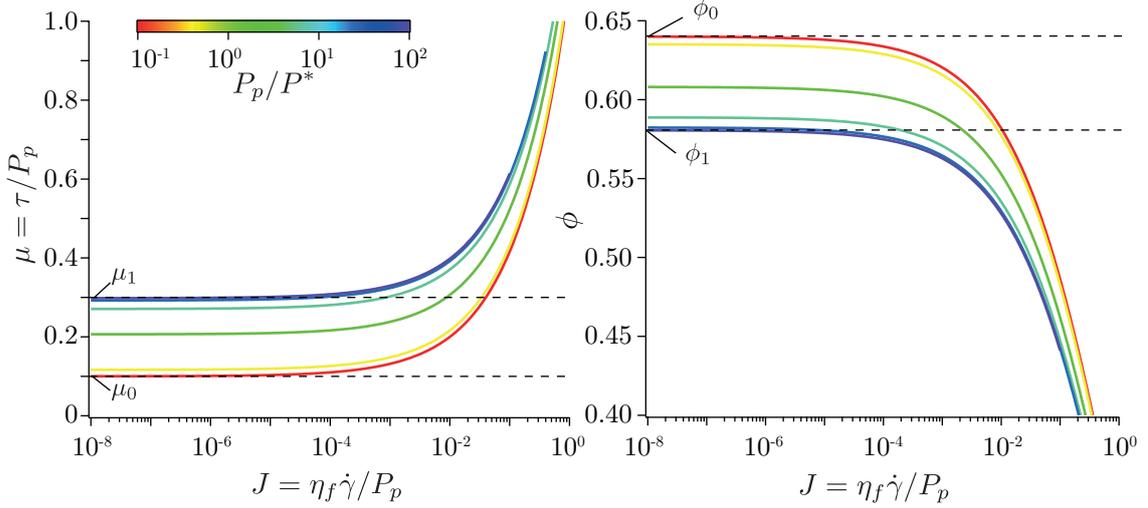


FIGURE 4.1 – Coefficient macroscopique de friction  $\mu$  et fraction volumique  $\phi$  en fonction du nombre visqueux  $J$  calculés le long d’iso-valeurs de  $P_p/P^*$  à partir des équations (4.5) et (4.6).

et

$$\phi(J, P_p/P^*) = \frac{\phi_J(P_p/P^*)}{1 + J^{1/2}}, \quad (4.6)$$

qui font apparaître les deux nombre sans dimensions  $J$  et  $P_p/P^*$ . Nous avons ici par simplicité supposé que les exposants des lois de puissance en  $J$ , ainsi que les préfacteurs ne dépendent pas du comportement frictionnel des particules. La figure 4.1 représente la rhéologie frictionnelle d’une suspension rhéo-épaississante prédite par ce modèle, calculé le long d’iso-valeurs de  $P_p/P^*$ , pour les paramètres :  $\mu_0 = 0.1$  ;  $\mu_1 = 0.3$ ,  $\phi_0 = 0.64$ ,  $\phi_1 = 0.58$  et  $A = 1$ . Les courbes ont globalement la même allure que celles d’une suspension ‘classique’ Newtonienne, cf. § 3.3. La principale différence est qu’ici, la suspension peut accéder à un continuum de courbes entre la limite frottante (en bleu) lorsque  $P_p/P^* \gg 1$  et la limite non-frottante (en rouge) lorsque  $P_p/P^* \ll 1$ . Dans la limite quasi-statique ( $J \rightarrow 0$ ), si l’on augmente progressivement la pression granulaire, le coefficient de friction  $\mu_c$  et la fraction volumique  $\phi_J$  de jamming passent continument de  $\mu_c = \mu_0$  et  $\phi_J = \phi_0$ , lorsque  $P_p/P^* \ll 1$ , à  $\mu_c = \mu_1$  et  $\phi_J = \phi_1$  lorsque  $P_p/P^* \gg 1$ .

Un point particulièrement remarquable est qu’en mode pression imposée, le rhéo-épaississement n’a rien de spectaculaire ! Ici, pas de saut discontinu de la viscosité, pas de courbes en forme de ‘S’, ou de rhéologie ré-entrante ; le passage des grains vers un mode d’interaction frictionnel ne fait qu’induire une légère augmentation du coefficient de friction de la suspension. On voit là encore apparaître un avantage de la configuration pression imposée qui permet d’éviter la divergence des contraintes et autres sources d’instabilités présentes à volume imposé. Augmenter le taux de cisaillement à pression imposée n’induit pas de rhéo-épaississement, mais seulement une diminution de la fraction volumique selon la loi  $\phi(J, P_p/P^*)$  pour laquelle la fraction de contact frictionnel est fixe et donnée par l’équation (4.4).

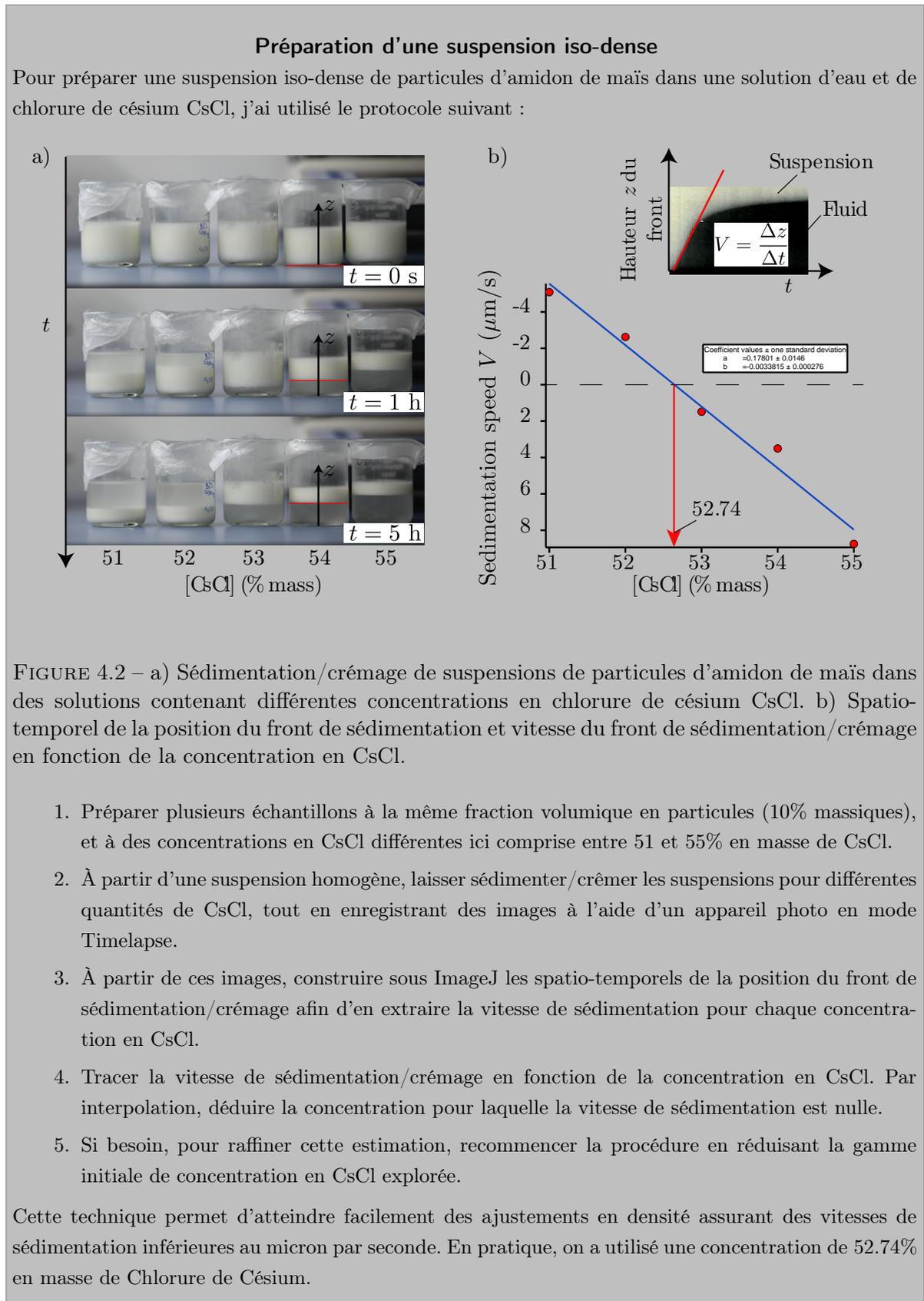
Encore une fois, le modèle présenté ci-dessus permet d’apprécier le comportement global attendu, mais il reste très qualitatif. En pratique, les prédictions théoriques et certaines simulations numériques indiquent qu’une suspension de grains frottants et non-frottants suivent

des lois constitutives qui n'ont pas les même exposants et préfacteurs. Pour exemple, on trouve que pour une suspension de sphères non-frottantes, les exposants théoriquement prédit sont  $\alpha_\phi \simeq 0.38$  pour la loi  $\phi(J)$ , et  $\alpha_\mu \simeq 0.33$  pour la loi  $\mu(J)$  [23, 29, 38]. Les mesures expérimentales récentes de Perrin *et al.* [39] reporte un exposant  $\alpha_\phi \simeq 0.37$ . En revanche, pour un système frottant  $\alpha_\mu \simeq 0.5$  [22, 23, 29]

## 4.2 Résultats expérimentaux

### 4.2.1 Premières tentatives avec la Maïzena

J'ai commencé par étudier la suspension rhéo-épaississante la plus emblématique qui soit : la célèbre "Maïzena", composée de grains d'amidon de maïs immergés dans de l'eau [93]. Les grains ont un diamètre d'environ  $15 \mu\text{m}$  et une densité  $\rho_p \simeq 1.5 \times 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ . Afin de s'affranchir des effets de sédimentation, la densité des particules est ajustée à celle du fluide en y dissolvant du Chlorure de Césium (encadré 'Préparation d'une suspension iso-dense'). La figure 4.3(a) montre les rhéogrammes de la suspension mesurés à volume imposé à différentes fractions volumiques. Ces courbes indiquent que la contrainte critique  $\tau_c$  au dessus de laquelle la suspension rhéo-épaissit est égale à  $\tau_c \simeq 10 \text{ Pa}$ . On peut alors estimer que la pression critique de répulsion  $P^* \simeq \tau_c/\mu_0 \simeq 100 \text{ Pa}$ , en faisant l'hypothèse que le coefficient de friction de la suspension dans l'état non-frottant est de l'ordre de  $\mu_0 \approx 0.1$ . Ainsi, pour sonder la branche non-frottante de la suspension à pression imposée, nous avons imposé une pression granulaire  $P_p^z = 10 \text{ Pa}$  bien inférieure à  $P^*$ , et effectué une série de mesures stationnaires du coefficient de friction  $\mu$  de la suspension en fonction du nombre visqueux  $J$ .



Les résultats de ces premières mesures à pression imposée sur la Maïzena sont présentés sur la figure 4.3(b), pour trois séries de manip. Lorsque le nombre visqueux  $J$  diminue, le coefficient de friction diminue jusqu'à atteindre une valeur relativement faible  $\mu \in [0.1 - 0.2]$

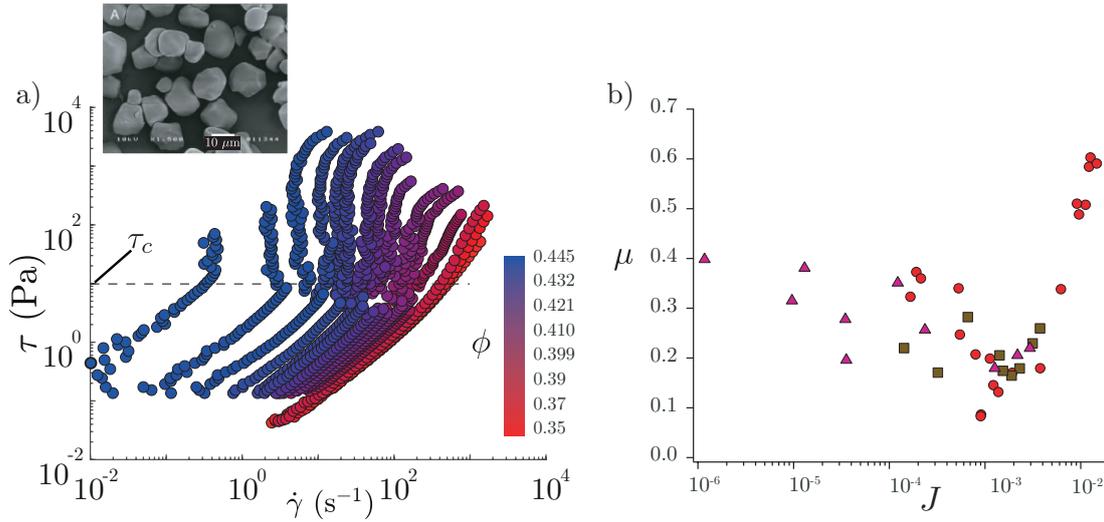


FIGURE 4.3 – a) Rhéogrammes  $\tau$  versus  $\dot{\gamma}$  mesurés à différentes fraction volumiques  $\phi$  pour une suspension d’amidon de Maïs et d’eau ajustée en densité. Image SEM des particules [94]. b) Coefficient de friction  $\mu$  versus nombre visqueux  $J$  obtenu pour  $P_p^z = 10$  Pa.

pour un nombre visqueux  $J \approx 10^{-3}$ . Cette valeur bien plus basse que celle d’une suspension frottante de sphère macroscopique classique (voir Chapitre 3) suggère que le frottement interparticulaire est très faible pour cette gamme de pression appliquée. Lorsque  $J$  diminue encore, on constate cependant que le coefficient de friction re-augmente, les fluctuations d’une mesure à l’autre devenant très grandes. Ce comportement inattendu nous a posé problème pendant très longtemps. Après de nombreuses tentatives et en essayant différents protocoles, je ne suis pas arrivé à converger vers des résultats reproductibles et en adéquation avec le comportement frictionnel attendu. Cette caractérisation de la branche non-frottante s’est avérée beaucoup plus délicate que prévu et on ne savait pas alors si le problème venait de la suspension elle-même, qui peut très bien avoir un comportement frictionnel inattendu, ou bien de la mesure, car il s’agissait des premières mesures que j’effectuais à de si faible pression (10 Pa) et pour une suspension avec des particules aussi petites ( $d \sim 15 \mu\text{m}$ ).

Le cours des choses a été que, après plusieurs mois de vaines tentatives, nous avons décidé de revenir au cas de la suspension ‘classique’ Newtonienne afin de s’assurer que l’on était bien en capacité d’effectuer des mesures reproductibles à des pressions de l’ordre de 10 Pa. La difficulté est réelle car, comme expliqué au § 2.1.3, lorsque la pression hydrostatique imposée est très faible (ici 10 Pa correspondent à une différence de hauteur entre l’échantillon et le réservoir de seulement 1 mm), le terme de courbure globale du ménisque  $-2\gamma \cos(\theta)/h$  de l’équation (2.6) n’est plus négligeable devant le terme de pression hydrostatique. Par exemple, si  $\theta$  passe de  $90^\circ$  (angle initial lorsque les références de pression et de masse sont réalisées) à  $85^\circ$ , alors la courbure du ménisque peut supporter l’intégralité de la pression hydrostatique imposée : nous perdons alors le contrôle de la pression granulaire au sein de l’échantillon. Par ailleurs, pour des valeurs si faible de la pression, les signaux sont tous très faibles et il est alors très important d’éviter toute source de bruit mécanique de type vibration du sol, ventilateur d’ordinateur etc...

Nous avons ainsi procédé à plusieurs améliorations du dispositif en le plaçant d’abord sur une table optique à coussin d’air (Thorlabs OpticTable 600 kg) afin d’isoler le Capillarytron des vibrations venant du sol. Nous avons aussi construit une boîte anti-évaporation mieux ajustée autour de l’axe de rotation, afin de limiter les surfaces d’échanges entre l’intérieur et l’extérieur de la boîte. Cette boîte est également équipée d’une gouttière que l’on peut remplir d’eau afin de saturer l’air en eau à l’intérieur de la boîte et ainsi limiter au maximum les effets d’évaporation. Après ces diverses améliorations, nous avons effectué une caractérisation de la rhéologie frictionnelle de la suspension ‘classique’ Newtonienne à pression imposée et pour une pression de 10 Pa. Ces données sont celles présentées sur la figure 3.4 du chapitre précédent. Le très bon accord avec les mesures réalisées à 100 Pa montrent que, bien que la mesure soit délicate, il est possible de sonder la rhéologie frictionnelle d’une suspension à des pressions aussi faible que 10 Pa.

Nous sommes alors revenus vers les suspensions rhéo-épaississantes, mais pour simplifier au maximum les choses, nous nous sommes orientés vers une suspension rhéo-épaississante modèle déjà bien caractérisée composée de particules de silice.

#### 4.2.2 Une suspension rhéo-épaississante modèle : micro-billes de silice

Nous avons effectué les expériences avec une suspension de particules de silice (Micro-beads GmbH) quasi-monodisperse de diamètre  $d = 24.7 \pm 0.9 \mu\text{m}$ , cf. figure 4.4a. Lorsque ces particules sont plongées dans de l’eau pure, elle développent une double couche électronique de Debye qui induit une force répulsive entre les particules à l’origine du rhéo-épaississement de la suspension, cf. figure 4.4b. La pression critique de répulsion induite par ces forces est de l’ordre de  $P^* \simeq 50 \text{ Pa}$  [58], du même ordre que pour la Maïzena. Le comportement frictionnel de cette suspension a été caractérisé pour la première fois dans l’équipe par Cécile Clavaud au cours de sa thèse, en utilisant un tambour tournant [45] ou le Darcytron [58], et en se limitant au régime quasi-statique (voir Chapitre 1). Ces travaux ont permis de mettre en évidence une transition frictionnelle lorsque la pression particulaire ou la pression de répulsion entre les grains varie, avec un coefficient de friction critique de la suspension  $\mu_c$  passant d’une valeur de l’ordre de 0.1 pour  $P_p \ll P^*$ , caractéristique de sphères non-frottantes, à une valeur de l’ordre de 0.3–0.4 pour  $P_p \gg P^*$ . Plus récemment, Hugo Perrin lors de son post-doc dans l’équipe a étendu ces mesures à une large gamme de  $J$  en utilisant des écoulements sous gravité, soit en tambour [39] soit sur plan incliné [40]. Toutefois, ces deux derniers dispositifs ne permettent d’accéder à la rhéologie qu’en faisant des hypothèses sur le profil de vitesse. Ils ne permettent également pas de sonder la transition en variant la pression particulaire. Dans la suite, nous utilisons le Capillarytron pour tenter de déterminer les lois constitutives frictionnelles de cette suspension rhéo-épaississante modèle. Les résultats obtenus par Clavaud *et al.* et Perrin *et al.* nous seront utiles pour vérifier la validité des mesures dans certaines limites.

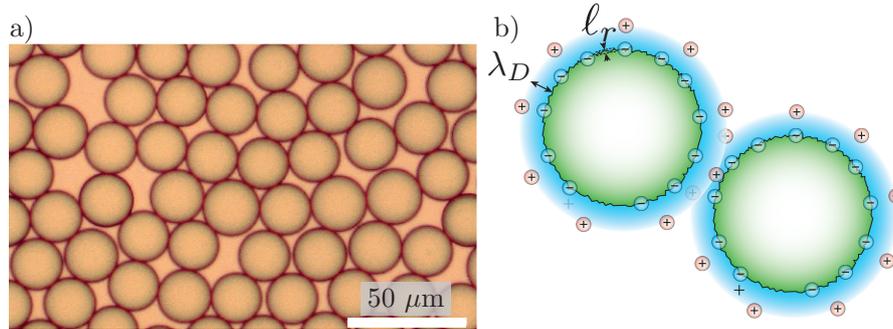


FIGURE 4.4 – a) Particules de silice de diamètre  $d = 24.7 \pm 0.9 \mu\text{m}$  produites par Microbeads GmbH. b) Schéma de la double couche électronique qui se développe lorsque les particules sont immergées dans de l’eau.  $\lambda_D$  est la longueur de Debye qui vaut environ  $1 \mu\text{m}$  dans l’eau pure et  $l_r = 3.7 \text{ nm}$  est la rugosité des particules [95].

### Préparation :

La nature électrostatique des interactions entre particules de silice dans des solutions aqueuses est bien documentée, de même que la relative stabilité de leurs interactions [52]. Pour nos expériences, ces particules présentent néanmoins un désavantage car il n’est pas possible d’ajuster leur densité à celle du fluide par ajout de sel. En effet, le sel aurait ici pour effet d’écranter les forces de répulsion, cf. encadré de la section 1.3.3, faisant disparaître le caractère rhéo-épaississant de la suspension que nous souhaitons étudier. Nous avons donc utilisé ces particules immergées dans de l’eau pure sans ajuster la densité, mais en prêtant une attention particulière pour que les mesures ne soient pas biaisées par des effets de sédimentation. Cela est possible en re-suspendant complètement les particules avant chaque mesure, en utilisant la caméra pour vérifier qu’il n’y a pas de sédimentation pendant la mesure, et en testant que les mesures ne présentent pas de dérives caractéristiques des effets de sédimentation. À noter que ces particules coutent très chères : près de 900 euros pour 50 mL de suspension à 5% de particules en masse. Pour se faire une idée, un seul échantillon pour remplir l’entrefer ( $h = 500 \mu\text{m}$ ) coûte environ 400 euros. J’ai donc pris grand soin de ne pas perdre de particules. Il faut par ailleurs faire très attention de ne pas polluer la suspension, car tout apport d’ions, ou variation du pH, peuvent entraîner une diminution de la pression critique de répulsion  $P^*$ . Les particules doivent ainsi être régulièrement nettoyées suivant une procédure stricte décrite dans l’encadré ‘Protocole de nettoyage des particules de silice’, afin de maintenir l’existence d’une force répulsive entre les particules et maximiser son amplitude.

### Protocole de nettoyage des particules de silice

Pour le protocole de nettoyage, les particules de silice sont immergées dans de l'acide de Caro  $\text{H}_2\text{SO}_5$ , obtenu par réaction entre de l'acide sulfurique  $\text{H}_2\text{SO}_4$  et du peroxyde d'hydrogène  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Ce mélange est communément appelé mélange "piranha" en raison de ses propriétés corrosives. Il est très délicat à manipuler car il dissout facilement les tissus et la peau.

1. **Préparation du mélange piranha.** Préparer environ 30 mL d'acide sulfurique dans un petit bécher. Préparer environ 15 mL de peroxyde d'hydrogène dans un autre petit bécher. Verser l'acide sulfurique dans un bécher de 150 mL muni d'un agitateur magnétique, que l'on nommera bécher A. Ce bécher doit résister à la chaleur (pyrex) car la réaction qui suit est très exothermique, et doit être bien fixé avec une pince pour éviter les accidents. Allumer l'agitateur magnétique puis verser doucement les 15 mL de peroxyde. Le mélange piranha est prêt, il commence à chauffer et à fumer.
2. **Nettoyage des particules.** Verser alors les grains de silice dans le mélange piranha, en essayant d'incorporer le moins d'eau possible. Laisser agir 10 minutes sous agitation magnétique.
3. **Élimination de l'acide du bécher A.** Il faut maintenant éliminer l'acide du bécher A, jusqu'à arriver à un pH neutre. Arrêter l'agitation, laisser sédimenter les particules, puis prélever tout le piranha surnageant les particules et le verser dans un bécher B de 2 L rempli d'eau distillée. Remplir ensuite le bécher A d'eau distillée pour procéder à la dilution du piranha, mélanger quelques secondes, laisser à nouveau sédimenter les particules, puis répéter l'opération. Contrôler de temps à autre le pH avec du papier pH. Une fois arrivé à un pH 7, la dilution est suffisante et les particules peuvent à nouveau être utilisées.
4. **Élimination de l'acide du bécher B.** Il faut également, en parallèle de l'étape précédente, éliminer le piranha du bécher B. Pour cela, prélever une petite quantité du bécher B (50 mL), puis la diluer dans un bécher C de 2L. Vider ensuite très lentement le contenu de ce bécher dans l'évier, en faisant couler le robinet à grande eau. Répéter l'opération autant de fois que nécessaire.

### Résultats :

La figure 4.5 résume l'ensemble des résultats que j'ai obtenu lors de ma campagne de mesures avec la suspension de micro-billes de silice. Elle présente le coefficient de friction macroscopique de la suspension  $\mu = \tau/P_p$  en fonction des deux paramètres de contrôle du problème : le nombre visqueux  $J$  et la pression particulaire adimensionnée  $P_p/P^*$ . Pour explorer l'espace des paramètres et mettre en évidence la transition frictionnelle, j'ai effectué des mesures dans 4 conditions expérimentales :

- (i) dans l'eau pure, à faible pression granulaire  $P_p/P^* \ll 1$ , en variant le nombre visqueux  $J$  (cercles bleus),
- (ii) dans l'eau pure, à forte pression granulaire  $P_p/P^* \gg 1$ , en variant le nombre visqueux  $J$  (carrés orange),
- (iii) dans une solution eau/NaCl de concentration  $[\text{NaCl}] = 0.2 \text{ mol.L}^{-1}$  suffisante pour écranter la force de répulsion entre les particules de telle sorte que  $P_p/P^* \gg 1$ , en variant le nombre visqueux  $J$  (cercles rouges),
- (iv) dans l'eau pure en procédant à une rampe décroissante de pression granulaire (triangles gris).

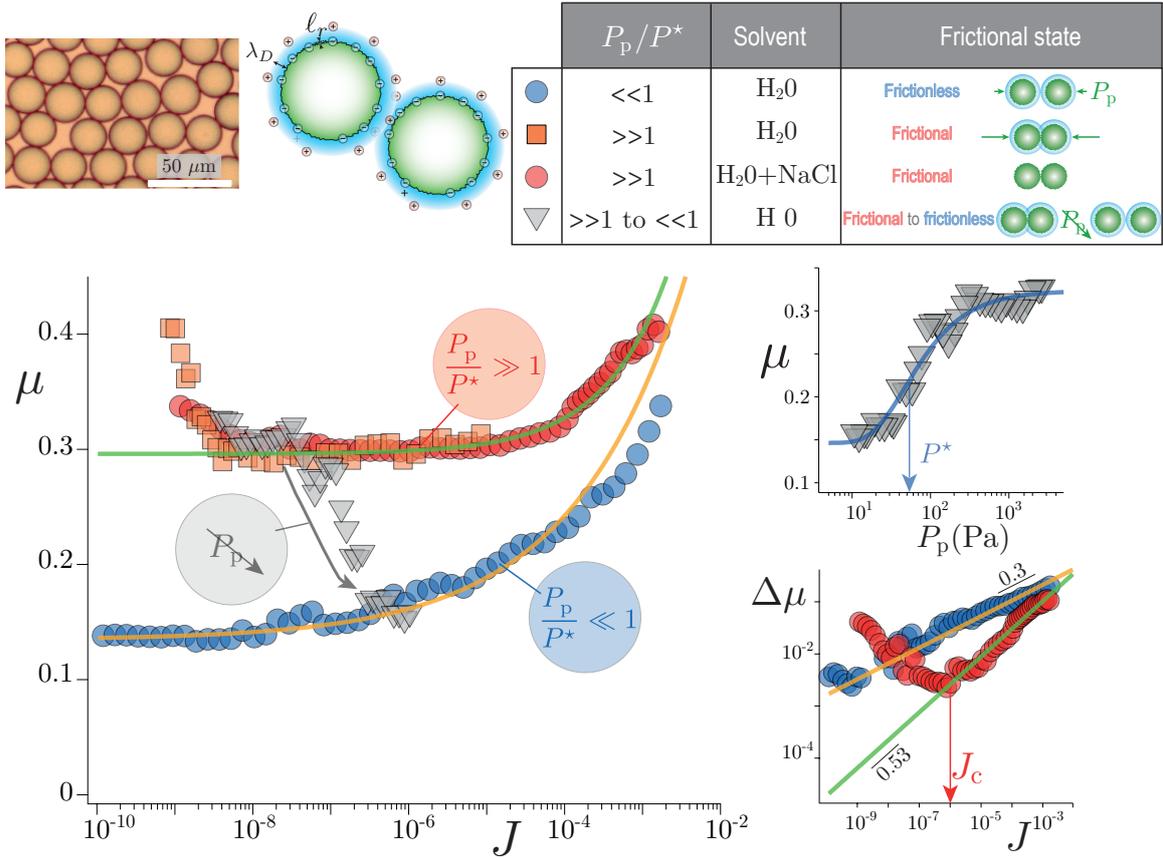


FIGURE 4.5 – Loi de friction de la suspension de billes de silice  $d = 24.7 \pm 0.9 \mu\text{m}$ . a) Coefficient de friction  $\mu$  de la suspension versus nombre visqueux  $J$ . b) Coefficient de friction  $\mu$  versus pression granulaire  $P_p$ . c) Sur-friction  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  versus  $J$ .

**État non frottant :** Les résultats (i) (Cercles bleus) ont été obtenus en faisant une rampe dynamique de contrainte de cisaillement à faible pression  $P_p^z = 5$  Pa, ce qui est un ordre de grandeur en dessous de la pression critique  $P^* \simeq 53$  Pa. On remarque tout d’abord que la valeur du coefficient de friction quasi-statique  $\mu_0 = 0.13 \pm 0.01$  est nettement inférieure à la valeur  $\simeq 0.3$  trouvée pour une suspension de sphères frottantes, cf. figure 3.5. Cette valeur  $\mu_0 \simeq 0.13$ , qui est proche de la valeur théorique du coefficient de friction quasi-statique d’une suspension de sphère non-frottante  $\mu_0 = 0.1$ , indique que le coefficient de friction entre les particules est quasi-nul  $\mu_p \approx 10^{-2}$  [96]. La courbe  $\mu(J)$  obtenue peut être bien ajustée par une loi de puissance du type  $\mu(J) = \mu_0 + AJ^{\alpha_\mu}$ , avec :  $\mu_0 = 0.13 \pm 0.01$ ,  $A = 1.7$ ,  $\alpha_\mu = 0.3$ . Comme illustré par la figure 4.5c, qui représente la sur-friction  $\delta\mu = \mu - \mu_c$  versus  $J$ , on trouve que la valeur de l’exposant  $\alpha_\mu = 0.3$  est nettement différente de celle obtenue pour la suspension classique  $\alpha_\mu = 0.5$ , et est assez proche des prédictions numériques  $\alpha_\mu = 0.35$  [23, 29, 38]. Ces mesures sont également cohérentes avec celles obtenues par Perrin *et al.* [40] sur la même suspension mais dans une configuration différente, le plan incliné, pour laquelle des hypothèses étaient nécessaires pour accéder au nombre  $J$ .

**État frottant :** Les résultats (ii) (Carrés oranges) ont été obtenus en réalisant une rampe dynamique de taux de cisaillement à pression imposée  $P_p \simeq 400$  Pa, soit bien au-dessus de la pression critique de répulsion  $P^*$ , tandis que les résultats (iii) (Cercles rouges) ont été obtenus en écrantant la force répulsive par dissolution de sel dans le fluide suspendant. L’ajout de sel NaCl, avec une concentration  $[\text{NaCl}] = 0.2$  mol.L $^{-1}$  réduit drastiquement la longueur de Debye  $\lambda_D \propto [\text{NaCl}]^{-1/2}$  de sorte que  $P_p/P^* \gg 1$ . Ici également, la variation de  $J$  est obtenue en effectuant une rampe dynamique de taux de cisaillement. Un premier résultat important ici est que les données issues de ces deux protocoles, pour lesquels  $P_p/P^* \gg 1$  (le premier obtenu en travaillant à forte pression, le second en diminuant la force répulsive), se superposent. On trouve que le coefficient de friction  $\mu$  de la suspension est globalement plus important que celui mesuré à  $P_p \simeq 5$  Pa, mais aussi que  $\mu(J)$  suit un comportement non-monotone ! En effet, dans la gamme des très faibles  $J$ , le coefficient de friction décroît dans un premier temps avec  $J$  jusqu’à  $J_c \approx 10^{-6}$ , suivant un régime dit de ‘velocity-weakening’ au cours duquel la friction décroît avec la vitesse de l’écoulement (ici donné par  $J$ ). Pour des valeurs de  $J$  plus grandes, le coefficient de friction de la suspension  $\mu$  ré-augmente suivant une loi de puissance du type  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$ , avec  $\mu_1 = 0.30 \pm 0.01$ ,  $\alpha_\mu = 0.53$  et  $A = 3.2$ , cf. figure 4.5c. Ces coefficients sont très proches de ceux obtenus pour la suspension ‘classique’ Newtonienne, cf. section 3.7. Le comportement non-monotone du coefficient de friction pour des particules frottantes confirme les résultats de Perrin *et al.* obtenus en tambour tournant sur la même suspension [39], où aux très faibles vitesses de rotation ils ont observé une transition entre un régime d’avalanche continue et un régime intermittent, suggérant une remontée du coefficient de frictions aux faibles  $J$ . Il est important de mentionner que nous sommes ici capable d’accéder à la partie décroissante (velocity-weakening) de la loi  $\mu(J)$  car nous contrôlons le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , contrairement à l’expérience de tambour tournant de Perrin *et al.* (2019) contrôlée en contrainte de cisaillement (angle d’inclinaison). Deux remarques sont encore nécessaires pour décrire complètement ce jeu de données. La première

est que contrairement au cas de la suspension ‘classique’ Newtonienne, cf. figure 3.5, nous pouvons ici mettre en évidence le comportement non-monotone de la loi frictionnelle car le fluide suspendant est de l’eau qui a une viscosité très faible. Cela permet d’explorer la rhéologie à de très faibles valeurs de  $J = \eta_f \dot{\gamma} / P_p$ , de l’ordre de  $J = 10^{-10}$ , tout en restant dans le régime visqueux en raison de la très petite taille des particules. En effet, le nombre de Stokes  $St = \rho_p d^2 \dot{\gamma} / \eta_f = (\rho_p d^2 P_p / \eta_f^2) \times J \simeq 10^{-4}$  pour  $J = 10^{-6}$  et  $P_p = 100$  Pa, ce qui est bien inférieur à la valeur critique de  $St = 10$  correspondant à la transition visqueuse/inertielle déterminée récemment [97]. La deuxième remarque est que, pour la même raison, il est plus difficile d’accéder aux grandes valeurs de  $J$  qu’avec la suspension newtonienne macroscopique. C’est pourquoi, pour obtenir la loi de puissance en  $J$  de la courbe frottante, nous nous sommes autorisés dans le cas (iii) à diminuer la valeur de la pression granulaire afin de pouvoir accéder à la gamme  $J \in [10^{-5} - 10^{-3}]$ . Cela est légitime, car pour ce cas où les forces répulsives sont écartés, la loi frictionnelle ne doit plus dépendre de la pression granulaire.

**Transition frictionnelle :** Les résultats (iv) (Triangle gris) ont été obtenus avec les billes de silices immergées dans de l’eau pure en réalisant, à partir d’un état initial frottant à forte pression, une rampe descendante de pression granulaire. On observe alors que les points passent continument de la branche frottante à forte pression, à la branche non-frottante à faible pression. La figure 4.5b représente ces mêmes données en fonction de la pression granulaire  $P_p$ . Les données sont ajustées selon la loi de mélange  $\mu(P_p^z) = \mu_0(1 - \exp(-P^*/P_p^z)) + \mu_1 \exp(-P^*/P_p^z)$  qui donne  $P^* = 47$  Pa, en très bon accord avec la valeur attendue  $P^* = 53$  Pa pour ces billes de silice dans de l’eau pure [58].

\* \* \*

Pour résumer, cette caractérisation du comportement frictionnel d’une suspension de particules répulsives de silice met en évidence l’existence de deux branches frictionnelles distinctes : une branche non-frottante lorsque  $P_p/P^* \ll 1$  et une branche frottante lorsque  $P_p/P^* \gg 1$ . Lorsque  $P_p \ll P^*$ , on trouve un coefficient de friction quasi-statique  $\mu_0 \simeq 0.13 \pm 0.01$ , proche de la valeur attendue  $\mu_0 = 0.1$  pour un système de sphères non-frottantes. Dans la limite  $P_p \gg P^*$ , nous trouvons  $\mu_1 = 0.30$ , une valeur très proche de celle mesurée pour la suspension ‘classique’ Newtonienne au chapitre 3. De plus, les exposants  $\alpha_\mu$  sont également différents entre le cas non-frottant et frottant. Dans le cas faible pression, on trouve  $\alpha_\mu = 0.30$  proche de la valeur attendue  $\alpha_\mu = 0.35$  [29, 38], alors qu’à forte pression, on trouve un exposant  $\alpha_\mu = 0.53$ , proche de la valeur attendue  $\alpha_\mu = 0.5$  pour un système frottant [23, 29, 38]. Enfin, en contrôlant le taux de cisaillement, nous avons pu accéder et mettre en évidence le caractère ‘velocity-weakening’ de la suspension dans son état frottant.

La figure 4.6 compare nos résultats à ceux de Perrin *et al.* [39] obtenus avec les mêmes particules mais en tambour tournant. Les données sont en très bon accord. Il est cependant important de mentionner que dans la configuration tambour tournant, l’écoulement est contrôlé en contrainte de cisaillement (via l’angle d’inclinaison). La zone instable ‘velocity weakening’ pour laquelle  $J < J_c$  est donc inaccessible : en pratique l’avalanche granulaire s’arrête dès que

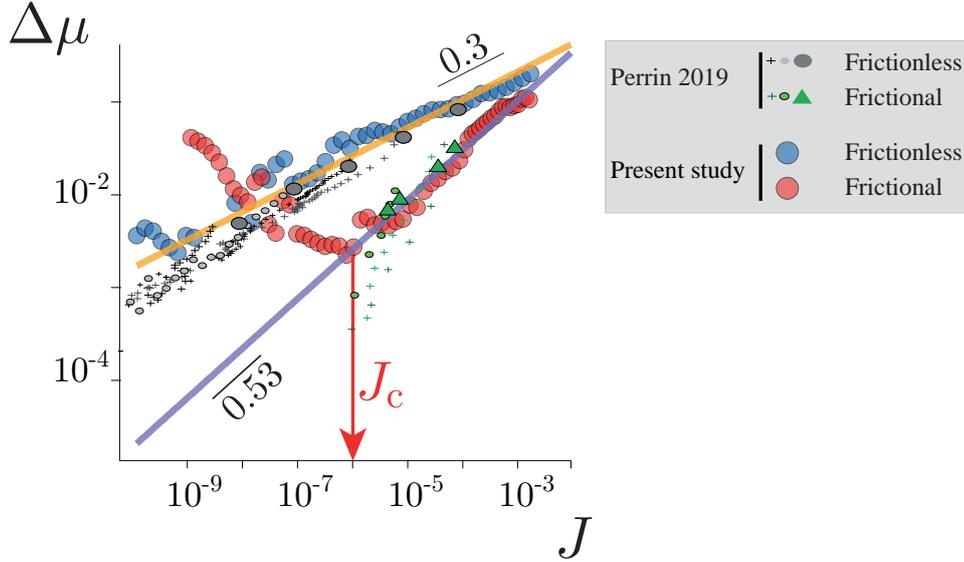


FIGURE 4.6 – Comparaison de la sur-friction  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  versus nombre visqueux  $J$  mesurée avec le Capillarytron et en tambour tournant [39].

$J < J_c$ . En revanche, le Capillarytron nous permet de contrôler le taux de cisaillement. Cela nous permet d'accéder à la zone instable de la courbe.

### 4.2.3 Un 'gap' expérimental

Les mesures présentées ci-dessus nous ont permis de réaliser le 'gap expérimental' qu'il y a entre étudier la rhéologie d'une suspension de particules macroscopiques dont le diamètre  $d > 100 \mu\text{m}$  et celle d'une suspension rhéo-épaississante pour laquelle  $d \sim 10 \mu\text{m}$ . Dans le premier cas, la contrainte normale granulaire  $P_p$  peut être choisie arbitrairement haute ce qui permet d'être bien au-dessus du bruit de mesure des capteurs, tandis que pour une suspension rhéo-épaississante (et donc constituée de particules micrométriques), l'étude de l'état non-frottant nécessite d'effectuer des mesures à des pressions particulières imposées ou mesurées extrêmement faibles, de l'ordre de  $P_p \sim 10 \text{ Pa}$ . Nous allons dans la suite donner d'avantage de détails sur les difficultés que nous avons rencontrées au cours de cette campagne de mesure et les techniques et protocoles de mesures employés.

#### Caractérisation de la branche non-frottante, $P_p/P^* \ll 1$

La difficulté principale ici est que la force répulsive entre les particules fixe une échelle de contrainte  $P^* \sim F_{\text{rep}}/d^2$ . Pour caractériser la branche non-frottante, le dispositif doit être en mesure de résoudre les signaux enregistrés sous la condition  $P_p/P^* \ll 1$ .

**Rampe de contrainte versus rampe de taux de cisaillement :** On s'est rendu compte que pour explorer la branche non-frottante à pression granulaire  $P_p$  imposée, il est préférable de réaliser une rampe décroissante de contrainte de cisaillement  $\tau$  (au lieu d'une rampe de  $\dot{\gamma}$ ,

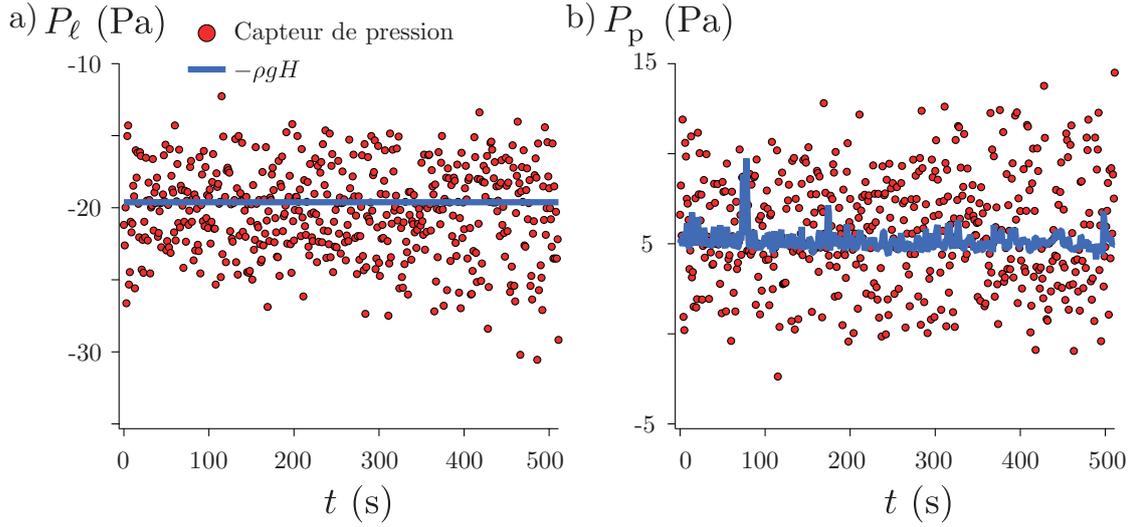


FIGURE 4.7 – Signaux temporels bruts a) pour la pression du liquide mesurée avec le capteur de pression (cercle rouge) et déterminée par la hauteur du réservoir  $P_\ell = -\rho g H$  (en bleu). b) Pression granulaire déduite correspondantes. La pression granulaire calculée avec  $P_p = m g / (\pi R^2) - \rho_f g H$  est significativement moins bruité.

tel que présenté au § 2.1.3). On impose alors au système une rampe de  $\mu = \tau/P_p$  à pression constante tout en mesurant l'évolution de  $J$  et de  $\phi$ . Imposer à la fois les contraintes de cisaillement et normale de faible amplitude permet de toujours conserver le système dans un état non-frottant. Si en revanche à  $P_p$  constant, on impose une rampe décroissante de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , il arrive de façon sporadique que la suspension se bloque transitoirement dans un état frottant, générant ainsi des pics de contraintes d'amplitude bien supérieure à  $P^*$ . Ces pics de contraintes sont très gênants pour la mesure, d'abord car on souhaite caractériser l'état non-frottant du système, et aussi car ils ont tendance à éjecter la suspension hors de la cellule de mesure.

**Courbure globale du ménisque :** Comme évoqué plus haut, à faible pression, le terme de courbure globale du ménisque  $-2\gamma \cos \theta / h$  n'est plus négligeable devant le terme de pression hydrostatique  $-\rho_f g H$ . Cela ne pose pas de problème pour mesurer  $P_p^z$ , car on accède directement à la pression  $P_p^z$  via l'équation (2.2) qui ne dépend pas de cette courbure. En revanche, pour que cette pression soit contrôlée et que, par exemple, elle reste bien constante lors des mesures de  $\mu(J)$  le long d'iso-valeur de pression, il faut faire très attention à ce que la courbure globale du ménisque reste constante. Pour cela, au lieu d'utiliser le critère relativement imprécis de 'maintenir la courbure constante' évoqué plus haut, on ajuste cette fois la valeur de l'entrefer afin de maintenir  $P_p^z$  égale à la valeur souhaitée. Un mode d'acquisition de l'interface Labview a été programmé dans ce sens, via une boucle de rétro-action PID, afin d'asservir la valeur de l'entrefer pour maintenir une pression granulaire constante. Au stade de développement actuel du Capillarytron, l'asservissement a été fait de façon manuelle pour l'ensemble des mesures présentées dans cette thèse.

**Résolution du capteur de pression du liquide :** Le capteur le plus limitant du dispositif est le capteur différentiel de pression du liquide dont le bruit de mesure dans le triton X-100 est de l'ordre de  $\delta P_\ell = \pm 1$  Pa, mais qui dans l'eau, donne un bruit plus important de l'ordre de  $\delta P_\ell = \pm 4$  Pa (rappelons que cela correspond à une hauteur d'eau de  $400 \mu\text{m}$ !). L'amplitude de ce bruit limite les possibilités d'accéder à de très faible pression granulaire. Il est alors important de réaliser qu'à volume imposé, la mesure de la pression du liquide est indispensable, car celle-ci s'adapte en fonction du taux de cisaillement et de la fraction volumique imposés, et qu'elle est nécessaire pour estimer la pression granulaire. En revanche, à pression imposée, la pression du liquide est imposée par la hauteur du réservoir selon  $P_\ell = -\rho g H$ . Dans ces conditions, il n'est pas nécessaire de la mesurer car pour calculer la pression granulaire, au lieu d'utiliser  $P_p = mg/(\pi R^2) - P_\ell$ , où  $P_\ell$  est mesurée avec le capteur de pression, nous pouvons utiliser  $P_p = mg/(\pi R^2) - \rho_f g H$ . En pratique, ces deux méthodes donnent les mêmes résultats, mais comme l'illustre la figure 4.7, cette nouvelle définition de la pression granulaire permet de significativement réduire le bruit de mesure, donnant ainsi la possibilité d'effectuer des mesures à de très faible pression.

### Caractérisation de la branche frottante, $P_p/P^* \gg 1$

**Oscillations périodiques et instabilités :** Une caractéristique importante de l'état frottant que l'on n'a pas encore discutée est l'apparition spontanée d'instabilités qui se manifestent sous la forme d'oscillations des contraintes. La figure 4.8 qui représente des signaux bruts issus d'une mesure à forte pression montre en effet des fluctuations importantes des contraintes. Ces fluctuations rappellent les fluctuations observées à volume imposé lorsque  $\tau > \tau_c$  [70, 98–100]. Cela étant, on aurait pu s'attendre, comme évoqué plus haut, qu'à pression imposée, le comportement de la suspension soit beaucoup plus stable du fait de l'absence de courbe en 'S', qui à volume imposé est la source de nombreuses instabilités [100, 101]. Nous avons tenté par plusieurs moyens d'éliminer ces fluctuations. D'abord, en contrôlant la contrainte plutôt que le taux de cisaillement afin, comme dans l'état non frottant, d'éviter les pics de contraintes. Ensuite, on pensait que l'instabilité pouvait résulter de comportements transitoires induits par des flux d'eau entre l'échantillon et le réservoir. Nous avons alors pu éliminer ces potentiels effets lors d'une mesure stationnaire en fermant le robinet. Enfin, nous avons aussi tenté de diminuer au maximum l'entrefer jusqu'à  $h = 300 \mu\text{m}$  afin d'éviter la localisation de l'écoulement et la formation de bandes de cisaillements qui peuvent aussi induire des instabilités [71]. En vain..., malgré toutes ces tentatives, nous observons que les oscillations de contraintes persistent dans l'état frottant. Les mesures reportées pour la branche frottante sur la figure 4.5 correspondent donc à des moyennes temporelles qui informent sur le comportement frictionnel moyen de la suspension.

Par quel mécanisme précis ces instabilités sont induites reste encore une question ouverte. Un candidat pourrait être la nature 'velocity-weakening', intrinsèquement instable, des courbes  $\mu(J)$  à forte pression. Cependant, on observe que les instabilités perdurent même à des grandes valeurs de  $J$ , où la courbe  $\mu(J)$  est monotone croissante et devrait donner des conditions d'écoulement stable. Par ailleurs, nous n'avons pas observé de telles instabilités dans le

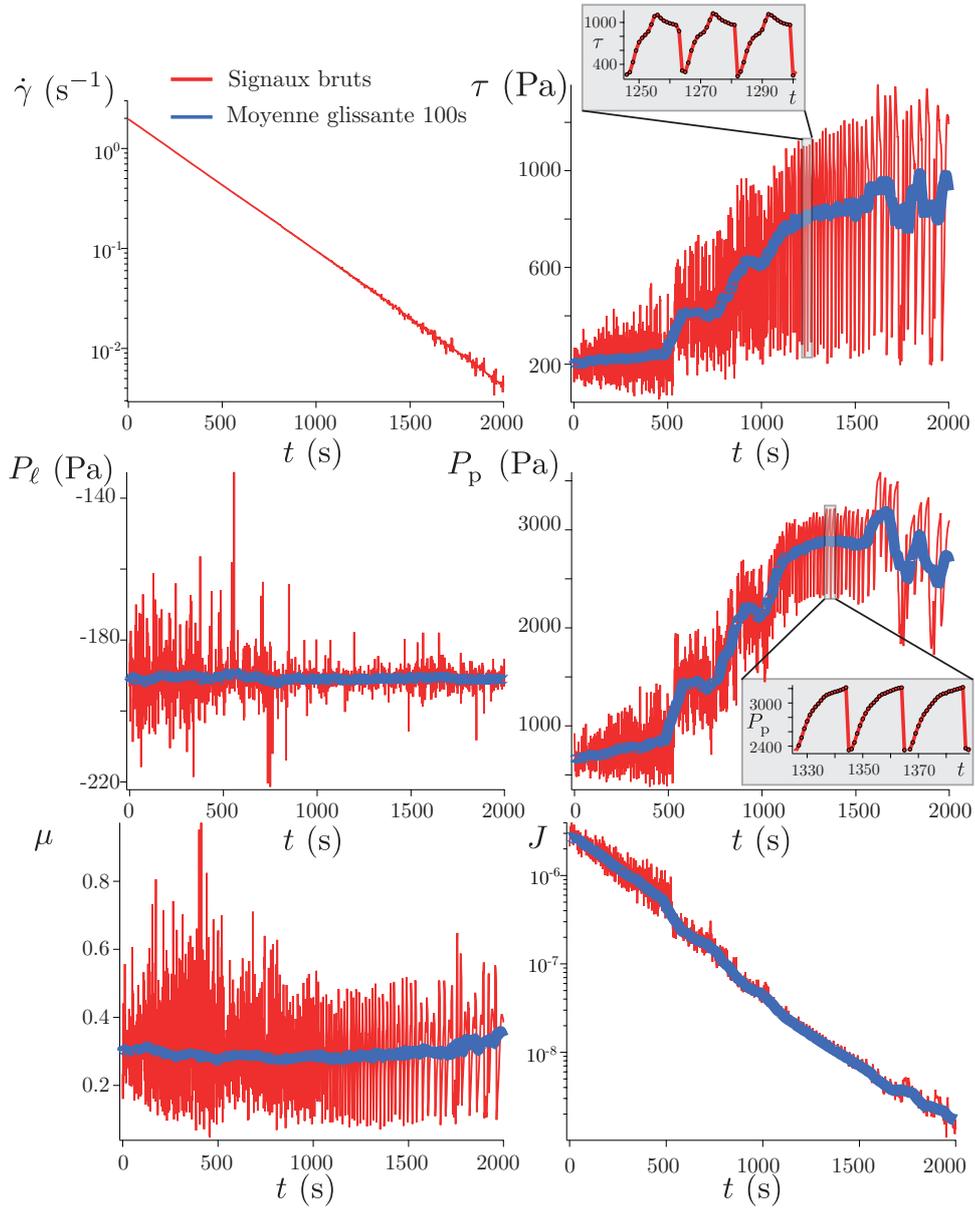


FIGURE 4.8 – Signaux temporels bruts et moyennés lors d’une mesure à haute pression, selon un protocole de mesure dynamique où le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est imposé. Insets : mise en évidence des oscillations périodiques de contrainte de cisaillement  $\tau$  et de pression  $P_p^z$ .

cas de la suspension ‘Newtonienne’ classique, qui a priori devrait aussi avoir un comportement ‘velocity-weakening’ à faible  $J$ . Une autre possibilité serait que les instabilités naissent de la nature rhéo-épaississante de la suspension et de la configuration plan/plan utilisée. En effet, même à forte pression imposée, coexistent une zone non-frottante de la suspension au centre de la cellule (où la pression est faible) et une zone frottante vers l’extérieur (où la pression est forte). Nous proposons dans les perspectives de cette thèse un moyen de tester cette hypothèse.

**Dérive de la pression granulaire normale à faible  $J$  :** Une deuxième caractéristique que l’on a également observé seulement pour l’état frottant est une dérive importante de

la pression granulaire lorsque  $J$  tend vers 0, cf. figure 4.8. Alors que la pression du liquide  $P_\ell$  est constante, ce qui implique que la pression granulaire radiale à l'interface  $P_p^r(r = R)$  est constante, la pression granulaire normale moyenne  $P_p^z \equiv \overline{P_p^z}$  augmente fortement lorsque  $J \rightarrow 0$ . Cela signifie que l'on n'arrive plus à contrôler la pression granulaire normale avec la pression du liquide. Cela n'a pas d'impact sur la valeur de  $\mu$  car la pression granulaire et la contrainte de cisaillement augmentent de façon concomitante et dans la limite  $P_p^z \gg P^*$ , l'état frictionnel de la suspension ne doit pas dépendre de la pression. Mais l'origine de cette augmentation n'est pas très claire. On pourrait invoquer un effet 'd'écrantage' de type Jansen du fait du grand rapport d'aspect de la cellule plan/plan. À très faibles  $J$  (i.e. proche de  $\phi_J$ ) la suspension granulaire pourrait-elle se comporter comme un milieu granulaire où des arches de pression redistribueraient les contraintes radiales en contraintes normales? Les perspectives de développement que je propose à la fin du manuscrit devraient permettre également de résoudre ce problème.

**Mesure de la fraction volumique :** Une des plus grandes frustrations de ma thèse est que l'on n'a pas été capable, pour cette partie consacrée à une suspension rhéo-épaississante modèle, de mesurer très précisément l'évolution de  $\phi$  et donc d'établir la deuxième loi constitutive de la suspension  $\phi(J, P_p/P^*)$ . Plusieurs facteurs ont rendu cette mesure inaccessible. La première est que les billes de silice sont vendues en suspension dont on ne connaît pas la fraction volumique initiale car les échantillons ont été utilisés un grand nombre de fois, re-nettoyé, etc... ; Ainsi, lorsque l'on pipette cette suspension dans la cellule de mesure, on ne connaît pas la masse initiale de particules que l'on insère. On ne peut alors pas calculer l'évolution de la fraction volumique de l'échantillon par référence à la fraction volumique initiale, mais seulement suivre l'évolution relative de la fraction volumique. Par ailleurs, pour cette suspension de billes de silice immergées dans de l'eau, le plus grand nombre visqueux  $J$  exploré est de l'ordre de  $J_{\max} = 10^{-3}$ , qui est encore peu éloigné du régime quasi-statique. Cela signifie que, même pour les plus grandes valeurs de  $J$  explorées, la fraction volumique est très peu différente de sa valeur maximale au jamming  $\phi_J$ . Typiquement, on s'attend à des variations de fraction volumique maximum de  $\Delta\phi \sim J_{\max}^{0.5} = 3\%$ . Enfin, il faut reconnaître que l'estimation de  $\phi$  basée sur la mesure de l'entrefer  $h$  n'est pas très précise. D'abord, l'échantillon n'a pas une symétrie de révolution parfaitement cylindrique, et bien souvent pour caractériser l'état frottant, on préfère garder le ménisque légèrement courbé vers l'intérieur afin de stabiliser l'échantillon et limiter les possibilités d'éjection de suspension. Les mesures que l'on a obtenues sont présentées sur la figure 4.9 en faisant l'hypothèse que  $\phi_0 = 0.64$  et  $\phi_1 = 0.58$ , des valeurs de fractions volumiques de jamming typiques pour un système de sphères non-frottantes et frottantes. On voit que sur toute la gamme de  $J$  explorée, les variations de  $\phi$  sont très petites de l'ordre de 1 à 2% et les mesures évoluent par paliers, qui correspondent aux variations que l'on impose à l'entrefer  $h$ .

Nous avons aussi tenté de mesurer  $\Delta\phi_J = \phi_0 - \phi_1$ , l'écart entre les deux fractions volumiques critiques de jamming qui devrait être d'environ 6%, donc relativement élevé et potentiellement accessible. Pour cela, on concentre d'abord la suspension au repos et à faible pression  $P_\ell \simeq 10$  Pa, afin de l'emmener dans son état non frottant tout doucement jusqu'à

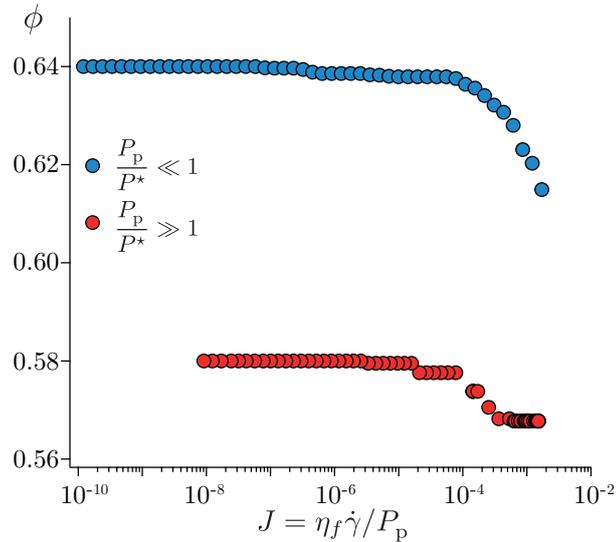


FIGURE 4.9 – Fraction volumique versus nombre visqueux  $J$  mesurée pour la branche non-frottante  $P_p/P^* \ll 1$  et frottante  $P_p/P^* \gg 1$ .

$\phi_0$ . Ensuite, on impose une grande pression au système  $P_\ell \simeq 500$  Pa pour le forcer dans son état frottant et on lance un cisaillement à très faible vitesse, typiquement  $n = 10^{-5}$  t/s dans l'espoir d'observer le système se dilater jusqu'à  $\phi_1$ . Bien que l'on observe une dynamique de dilatation lors de la mise en écoulement de la suspension, nous ne sommes pas arrivés à converger vers un protocole donnant des résultats reproductibles. Je propose dans les perspectives de cette thèse une solution qui permettrait d'améliorer grandement l'estimation de l'évolution de la fraction volumique.

### 4.3 Ouverture : vers des suspensions colloïdales complexes

Nous avons vu dans ce chapitre que le Capillarytron permet d'accéder au comportement frictionnel d'une suspension rhéo-épaississante sur un système 'idéal', composé de particules rigides sphériques, quasi-monodisperses et relativement 'grosses', c'est-à-dire non Browniennes, même si de taille micrométrique. Au cours des derniers mois de ma thèse, j'ai voulu tester la versatilité du Capillarytron sur des suspensions colloïdales plus complexes et variées. Ce travail est encore en cours.

#### 4.3.1 Amidon de pomme de terre + eau

Malgré le relatif échec des tests avec la 'Maïzena' (amidon de maïs), j'ai de nouveau tenté des mesures sur une suspension de grains d'amidon, mais en utilisant cette fois-ci de l'amidon de pomme de terre immergés dans de l'eau. Contrairement aux grains d'amidon de maïs qui ont une forme facettée en forme de petit cube, les grains d'amidon de pomme de terre sont plus gros (de l'ordre de  $30 \mu\text{m}$ ) et ont une forme lisse très proche d'un ellipsoïde, cf. figure 4.10. La figure 4.10a représente les rhéogrammes de cette suspension mesurés à volume imposé. On retrouve un comportement typique d'une suspension rhéo-épaississante, avec une contrainte critique

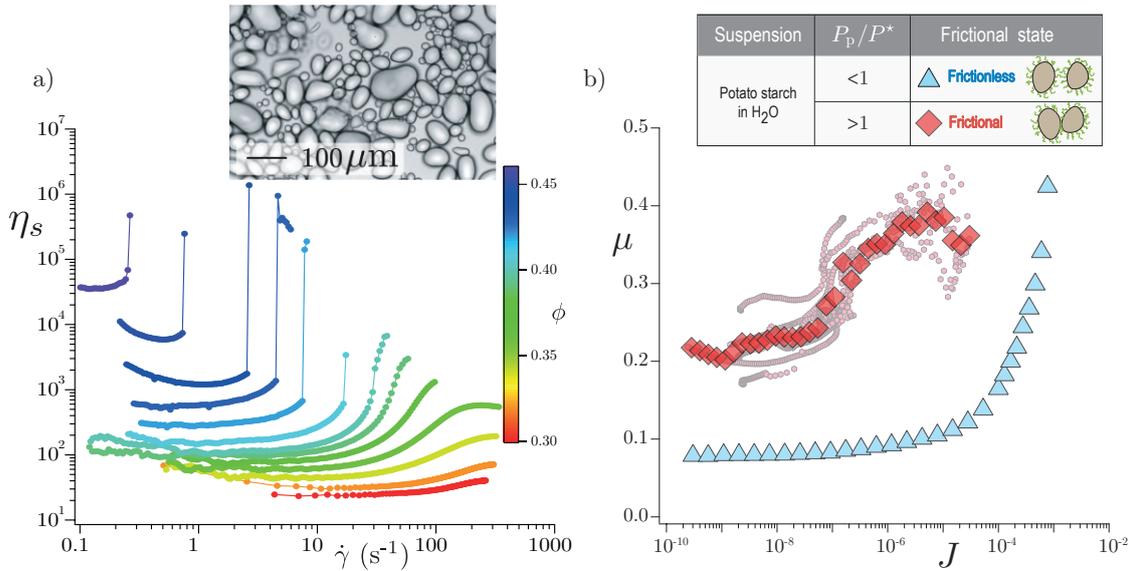


FIGURE 4.10 – a) Rhéogrammes d’une suspension d’amidon de pomme de terre dans de l’eau à différent fraction volumique et image des particules d’amidon de pomme de terre. b) Coefficient de friction  $\mu$  de la suspension versus  $J$  mesuré à faible pression ( $P/P^* < 1$ , en bleu) et à forte pression ( $P/P^* > 1$ , en rouge). Les hexagones violets en transparence indiquent les mesures individuelles.

de rhéo-épaississement  $\tau_c \approx 4$  Pa, ce qui suggère une pression critique de répulsion  $P^* = \tau_c/\mu_0 \approx 40$  Pa en prenant  $\mu_0 \simeq 0.1$ . La figure 4.10b présente le comportement frictionnel de la suspension mesuré avec le Capillarytron à faible (10 Pa) et forte (250 Pa) pression. La courbe non-frottante (en bleu) montre un plateau quasi-statique de très faible friction avec  $\mu_c = 0.09 \pm 0.01$ , indiquant que les grains d’amidons à faible pression se comportent tels des grains non-frottants. La courbe frottante (en rouge) présente un coefficient de friction plus élevé. On observe aussi un changement de comportement autour de  $J \approx 10^{-7}$ . En dessous de cette valeur ( $J < 10^{-7}$ ), on mesure un plateau quasi-statique bien stable alors qu’au dessus ( $J > 10^{-7}$ ), le coefficient de friction augmente et présente des fluctuations plus importantes. L’origine de ce phénomène est incertain mais une telle transition pourrait naître par exemple d’un effet de ‘vieillissement’ des contacts induit par l’enchevêtrement des polymères à la surface des particules d’amidon, qui ne peut avoir lieu que si la durée des contacts entre particules est suffisamment longue, donc à faible vitesse. Il serait intéressant d’explorer d’avantage cette transition, par exemple en évaluant si ce nombre visqueux critique reflète bien l’existence d’une vitesse critique. Quoiqu’il en soit, ces mesures montrent la transition frictionnelle sur une suspension rhéo-épaississante de nature très différente que celle de silice (interaction par brosse de polymère versus interaction électrostatique, particules hygroscopiques versus particules inertes, forme non sphérique).

### 4.3.2 Silice 4.7 $\mu\text{m}$ + eau

Nous avons tenté de nous rapprocher du monde des suspensions Browniennes en utilisant des particules de silice 5 fois plus petites que celle utilisées dans la section précédente ( $d = 4.7$

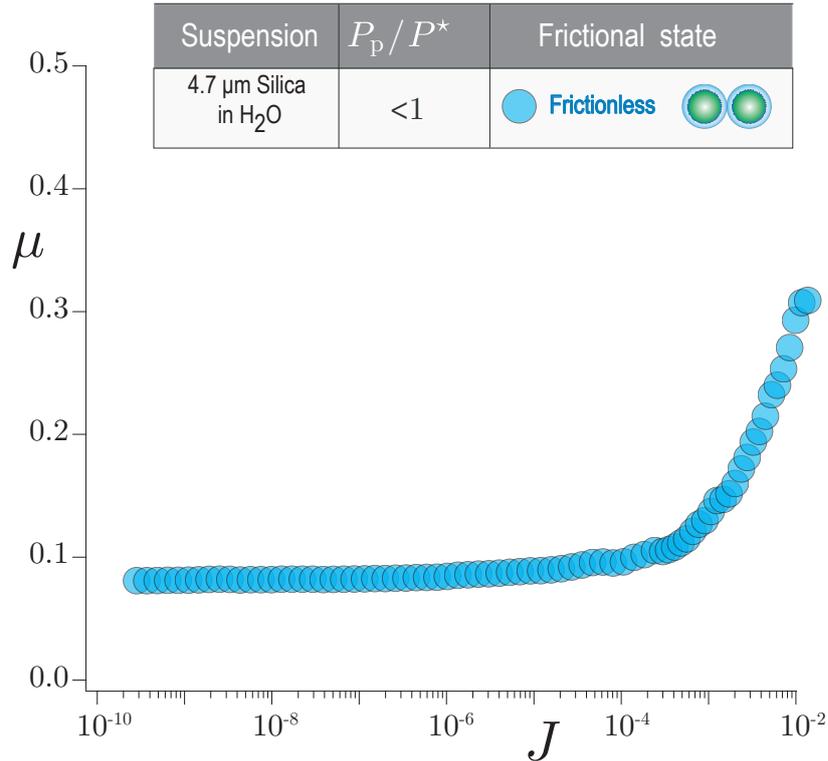


FIGURE 4.11 – Coefficient de friction  $\mu$  versus  $J$  obtenu à faible pression  $P/P^* < 1$  pour une suspension de billes de silices de diamètre  $d = 4.7 \mu\text{m}$ .

$\mu\text{m}$ ). Pour ces particules plus petites nous avons remplacé le tamis en nylon par un filtre commercial MF-Millipore® de  $3 \mu\text{m}$ . Les particules étant plus petites, on s'attend à accéder plus facilement à la branche non-frottante car l'amplitude de la force répulsive est donnée par la formule  $F_0/d \sim 1 \text{ mN/m}$  [52], ce qui correspond à une pression de répulsion critique  $P^* = F_0/d^2 \propto 1/d$ . Ainsi, en diminuant la taille des particules, la pression de répulsion augmente ce qui permet d'étudier la branche non frottante en appliquant des pressions bien supérieures à la limite de résolution des capteurs. En pratique, pour ces particules de taille 5 fois plus petite que la suspension de silice précédente ( $d = 24.7 \mu\text{m}$ ), on a  $P^* \approx 5 \times 50 \text{ Pa} \approx 250 \text{ Pa}$ , ce qui permet en imposant une pression de  $P_p = 20 \text{ Pa}$  de sonder la branche non-frictionnelle. La courbe obtenue à ces faibles niveaux de pression est présentée sur la figure 4.11. Elle montre un comportement clairement non-frottant avec une valeur de  $\mu_c = 0.09 \pm 0.01$ , bien plus proche de la valeur théorique attendu  $\mu_c = 0.1$  que pour les billes de taille  $d = 24.7 \mu\text{m}$  (voir Fig. 4.5). La contre-partie est toutefois que plus l'on diminue la taille des particules, plus il est difficile d'explorer la branche frottante car le niveau de pression particulière à appliquer augmente. Typiquement dans le cas de cette suspension, il nous a fallu imposer une pression de  $2500 \text{ Pa}$ . Mais les mesures effectuées dans ces conditions n'étaient pas concluantes et mériteraient d'y consacrer d'avantage de temps. En particulier, pour ces fortes pressions, le ménisque tend à être instable provoquant des éjections de suspension hors de l'entrefer.

## 4.4 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de montrer que le Capillarytron permet de sonder le comportement frictionnel de suspensions rhéo-épaississantes, non seulement dans le régime quasi-statique, mais aussi au-delà dans le régime dynamique dépendant de  $J$ . En variant la pression imposée et la portée de la force répulsive sur une suspension non-Brownienne de microbilles de silice, nous avons pu mettre en évidence la branche non-frottante accessible lorsque  $P_p \ll P^*$  et la branche frottante lorsque  $P_p \gg P^*$ . Les lois rhéologiques caractérisant ces deux comportements extrêmes sont

$$\begin{array}{ll} \text{Branche non-frottante} & \text{Branche frottante} \\ \mu(J, P_p \ll P^*) = \mu_0 + 1.7J^{0.30} & \mu(J, P_p \gg P^*) = \mu_1 + 3.2J^{0.53} \end{array}$$

avec  $\mu_0 = 0.13$ ,  $\mu_1 = 0.30$ . Concernant la branche non-frottante, la valeur du coefficient de friction quasi-statique  $\mu_0 = 0.13$  est assez proche de la valeur attendue  $\mu_0 = 0.1$  pour des sphères non-frottantes [28]. Cette légère différence pourrait venir du fait que nous avons effectué les mesures à 5 Pa, seulement un ordre de grandeur plus faible que  $P^*$ . La transition frictionnelle est en pratique assez large et s'opère sur une large gamme de pressions [24, 58]. Il est alors possible que pour que la fraction de contacts frictionnels soit strictement nulle, il soit nécessaire d'effectuer les mesures à des pressions encore plus faibles. Les mesures sur une suspension de silice de taille 5 fois plus petite, pour laquelle la pression de répulsion est plus grande et le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_0 = 0.09$  très proche de la valeur théorique attendue, semble confirmer cette hypothèse. L'exposant  $\alpha_\mu = 0.30$  de la loi de puissance en  $J$  est proche de la valeur prédite  $\alpha_\mu = 0.35$  [23, 29, 38]. Concernant la branche frottante, le coefficient  $\mu_1 = 0.30$  et l'exposant  $\alpha_\mu = 0.53$  sont très proches des valeurs obtenues pour la suspension 'classique' Newtonienne, elles même en très bon accord avec les prédictions, cf. section 3.7. La branche frottante est atteinte lorsque  $P_p \gg P^*$ , aussi bien en augmentant  $P_p$ , qu'en diminuant  $P^*$  par dissolution d'ion dans le fluide suspendant, montrant qu'à pression imposée  $P_p/P^*$  est le nombre sans dimension qui contrôle la transition frictionnelle. Enfin, cette caractérisation de la branche frottante met en évidence le comportement 'velocity-weakening' pour  $J < J_c = 10^{-6}$  de la suspension, confirmant ainsi les résultats très récents de Perrin *et al.* [39] obtenus en tambour tournant.

Accéder à la branche non-frottante représente une véritable difficulté expérimentale qui a nécessité des efforts importants sur les mesures et les protocoles expérimentaux. On a vu aussi apparaître certaine limitation du Capillarytron : nous n'avons pas pu mesurer précisément l'évolution de la fraction volumique et des instabilités apparaissent lorsque le système est forcé dans l'état frottant. Je propose dans les perspectives de cette thèse plusieurs modifications du dispositifs qui permettraient de palier à ces difficultés.

Enfin, à la fin du Chapitre, nous avons commencé à tester le Capillarytron sur des suspensions colloïdales plus complexes, soit par la nature de leur interaction et leur forme, soit par leur taille qui se rapproche de suspensions Browniennes. L'étude de ces systèmes est une perspective naturelle de cette thèse.

## 5.1 Conclusions

Nous arrivons à présent à la conclusion de cette thèse. Le défi initial, lancé par la compréhension récente du rhéo-épaississement et les nombreuses mises en évidence du rôle prépondérant de la friction inter-particules, était d'être capable de sonder *in situ* le comportement frictionnel de suspensions dont la taille des particules est seulement de quelques microns. Le challenge était de taille car l'approche *pression imposée*, nécessaire pour ce genre de diagnostic 'frictionnel', ne pouvait alors s'appuyer sur les techniques usuelles utilisant une grille mobile pour imposer la pression granulaire ; les grains constitutifs des suspensions colloïdales sont en effet bien trop petits pour ce genre d'approche. Le rhéomètre que j'ai développé au cours de cette thèse répond au défi sus cité en proposant le développement d'un nouveau concept en rhéométrie, celui d'utiliser l'interface capillaire air/suspension pour imposer la pression granulaire – d'où son affectueux sobriquet de *Capillarytron*. En contrôlant la pression du liquide au sein de l'échantillon via un réservoir de hauteur ajustable, l'interface capillaire air/suspension peut être 'mise en tension' sur les grains de façon contrôlée. Cette technique donne non seulement un contrôle très précis de la pression granulaire ( $< 1$  Pa), mais elle présente surtout l'avantage de principe d'être applicable à des grains très petits, fonctionnant dans la gamme du micromètre ici recherchée.

Après avoir développé le dispositif et mis au point les différents aspects de son interfaçage avec l'ingénieur électronicien du labo, j'ai dans un premier temps validé la preuve de concept du Capillarytron, en étudiant la rhéologie d'une suspension 'classique' Newtonienne composée de particules macroscopiques de PMMA de diamètre  $d = 120 \mu\text{m}$ . Nous avons non seulement retrouvé le comportement frictionnelle  $\mu(J)$  et  $\phi(J)$  attendu de ces suspensions tel que prédit par les modèles récents ou mesurées avec le rhéomètre à pression imposée "classique" (à grille mobile) présent à l'IUSTI, mais également accédé aux différences de contraintes normales  $N_1$  et  $N_2$  de la suspension. Dans un deuxième temps, j'ai étudié le comportement frictionnel d'une suspension rhéo-épaississante non-Brownienne modèle de billes de silice de diamètre

$d = 24.7 \mu\text{m}$ . Ces mesures montrent que le Capillarytron peut être utilisé en mode *volume imposé* ou *pression imposée* offrant ainsi une grande versatilité d'utilisation et donne accès à la rhéologie frictionnelle  $[\mu(J), \phi(J)]$  de la suspension. Son atout majeur est la large gamme dynamique accessible pour chacun des paramètres de contrôle ; la fraction volumique pouvant être augmenté à volume imposé jusqu'à atteindre quelques fractions de pourcent de la fraction volumique de jamming, ou encore le nombre visqueux pouvant atteindre à pression imposée des valeurs aussi basse que  $J \sim 10^{-10}$ . Quel est l'intérêt d'étendre ainsi la gamme de mesure ? En premier lieu, cela permet de caractériser avec précision les exposants et la fraction volumique de jamming qui prescrivent la forme des lois constitutives. Cela m'a aussi permis par exemple de mettre en évidence le comportement 'velocity-weakening' de la branche frottante à faible  $J$ , phénomène qui n'émerge qu'à des valeurs de nombre visqueux  $J$  inférieur à  $10^{-6}$ . Pour comparaison, les simulations numériques type DEM les plus à la pointe peinent encore aujourd'hui à simuler des systèmes pour lesquels  $J < 10^{-5}$ .

Les données obtenues sont à ma connaissance, les premières à donner une vision globale du comportement frictionnel d'une suspension rhéo-épaississante, documentant aussi bien le régime quasi-statique ( $J \rightarrow 0$ ) que dynamique ( $J > 0$ ). Elles montrent que la présence d'une force répulsive entre les particules induit l'existence d'un état non frottant des particules à faible pression granulaire ( $P_p/P^* < 1$ ). Alors qu'à forte pression ( $P_p/P^* > 1$ ) ou lorsque la force répulsive entre les particules est écrantée par addition d'ions, la suspension est frottante. La transition frictionnelle anticipée par Wyart & Cates en 2014 pour expliquer le rhéo-épaississement est ici directement mise en évidence en augmentant le rapport  $P_p/P^*$ . Ces données complètent ainsi les résultats obtenus précédemment par Cécile Clavaud en tambour tournant et avec le Darcytron [58, 95].

\* \* \*

Au delà de la mise en évidence de la transition frictionnelle, maintenant déjà largement acceptée par la communauté, le Capillarytron représente un nouvel outil qui, comme je l'ai montré, donne accès à une grande quantité d'informations généralement inaccessibles en rhéométrie conventionnelle. L'accès aux lois constitutives frictionnelles  $[\mu(J), \phi(J)]$  de la suspension renseignent directement sur l'état frictionnel des particules. Pour exemple, pour des particules sphériques, le coefficient de friction quasi-statique  $\mu_c$  de la suspension indique directement quel est la valeur du coefficient de friction inter-particules  $\mu_p$  [57, 96]. Le Capillarytron devrait ainsi permettre de renseigner sur le comportement frictionnel induit par tel ou tel coating, traitement de surface ou rugosité contrôlé des particules actuellement synthétisées par différents groupes de recherche (voir plus loin § Perspectives). Enfin, le Capillarytron ouvre aussi la possibilité d'explorer la rhéologie des suspensions Browniennes à pression imposée – une nouvelle voie dans le domaine qui au vue des progrès effectués grâce à cette approche dans le domaine des suspensions non-Browniennes, laisse présager de recherches futures particulièrement intéressantes.

## 5.2 Perspectives

### 5.2.1 Signature frictionnelle de suspensions complexes : Raspberry, Click-chemistry, $\text{CaCO}_3$ , PMMA gonflé

Comme évoqué dans l'introduction, un certain nombre de groupes de recherche synthétisent actuellement des particules aux propriétés de surface contrôlées afin de conférer à la suspension des propriétés rhéologiques choisies. À ce titre, nous avons initié une collaboration avec le groupe de Lucio Isa de l'ETH à Zurich qui nous a fait parvenir un lot de 'Raspberry' particles, qui sont des particules de silice de  $2 \mu\text{m}$  de diamètre. Ces particules ont la particularité d'être décorées de particules de silice plus petites, d'une centaine de nanomètre, afin de contrôler leur rugosité, cf. figure 5.1a. Le groupe de L. Isa a pu montrer dans un article récent que ces rugosités permettent de fortement modifier la fraction volumique de jamming et la contrainte de cisaillement critique de rhéo-épaississement de la suspension [59]. Il sera très intéressant d'étudier leur comportement frictionnel au Capillarytron.

Par ailleurs, nous avons pris contact avec Elisabeth Lemaire du Laboratoire InPhyNi à Nice et Éric Drockenmuller qui synthétise des particules sur la base de la 'Click-Chemistry', cf. figure 5.1b. Les mesures effectuées en rhéologie classique à volume imposé indiquent que la viscosité de la suspension se comporte différemment en fonction des polymères greffés [60]. Le Capillarytron devrait permettre ici de mieux comprendre l'influence de ces différents coatings sur le comportement frictionnel des particules.

Dans le cadre du projet ANR ScienceFriction dans lequel s'est effectuée ma thèse, nous sommes en collaboration avec Chryso, une entreprise spécialisée dans la formulation des bétons modernes. L'objectif ici serait de pouvoir établir un lien entre le comportement frictionnel d'une suspension de Carbonate de Calcium (cf. figure 5.1c), entrant dans la composition des bétons, et les technologies et dosages des différents polymères proposés par Chryso pour améliorer les propriétés d'écoulement des bétons. Cela pourrait éventuellement aider à optimiser la formulation des molécules.

Enfin, nous avons récemment été contacté par le groupe de Nicolas Sanson de l'ESPCI et Elisabeth Guazzelli, Mathieu Roché et Lily Blaiset du laboratoire MSC, qui fabriquent des particules de PMMA partiellement hydrolysées. Cette hydrolyse conduit à la formation d'une couche d'épaisseur ajustable de gel de PMMA enrobant un coeur de particule rigide. Ils ont effectué une première série de mesures en tambour tournant en reprenant le dispositif de Cécile Clavaud qui montrent que ces particules, bien que macroscopiques ( $d \approx 80 \mu\text{m}$ ), se comportent de façon non-frottante. Non seulement la couche de gel est constituée de polymères de PMMA déployés dans le solvant, mais ces polymères sont aussi chargés électrostatiquement. Nous envisageons très prochainement d'étudier le comportement frictionnel de ces suspensions à l'aide du Capillarytron.

### 5.2.2 Mesure de $\phi$

Une perspective intéressante afin d'améliorer le Capillarytron concerne la mesure de la fraction volumique. Celle-ci n'est pas très précise, en particulier à pression imposée, car on

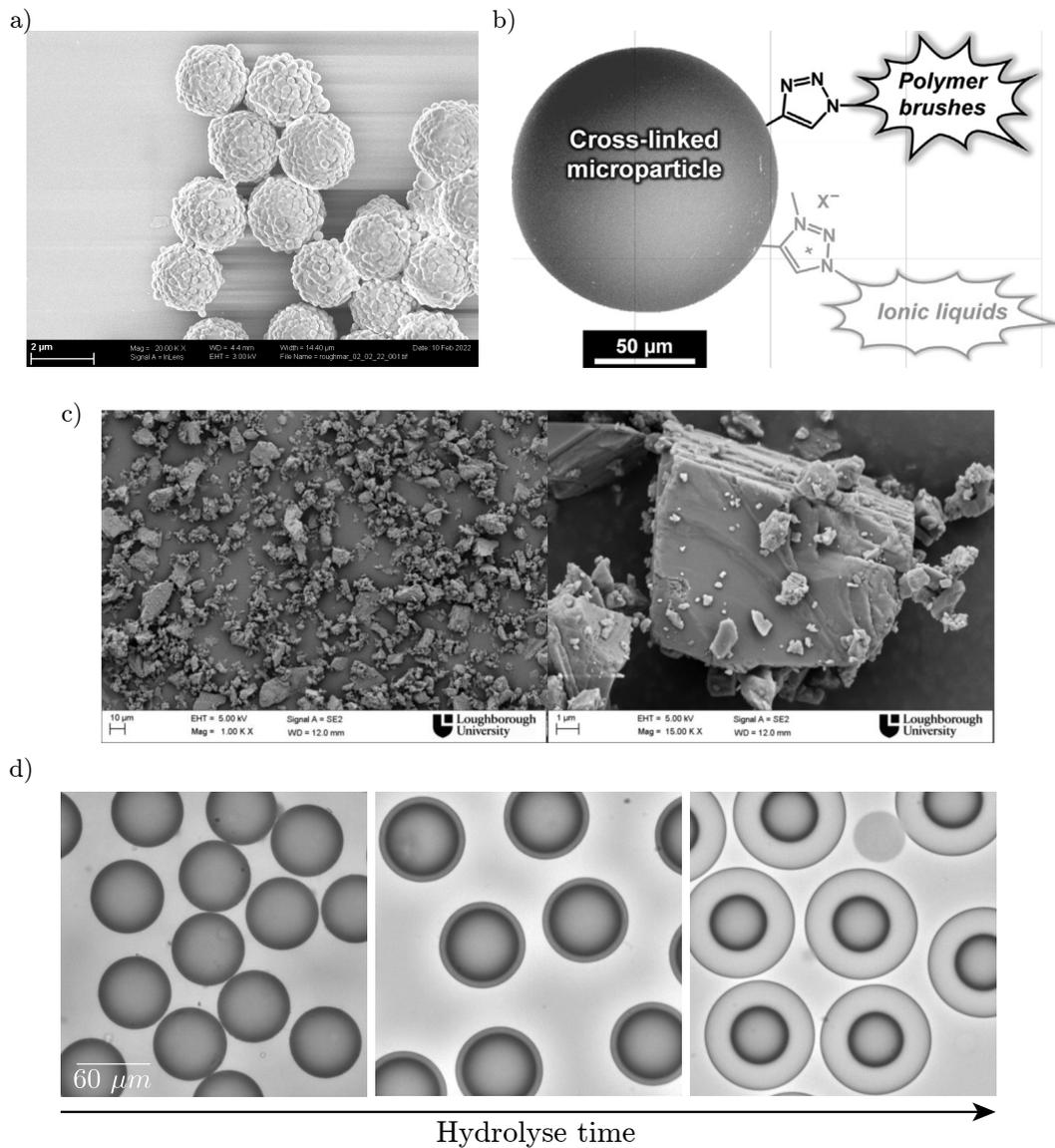


FIGURE 5.1 – a) ‘Raspberry particules’ du groupe de L. Isa, ETH, Zurich. b) ‘Click-chemistry particles’ du groupe de E. Drockenmuller, Université Claude Bernard, Lyon et E. Lemaire Inphyni Nice, c) Carbonate de Calcium de la société Chryso, France, d) ‘Swollen’ PMMA synthétisée par Nicolas Sanson ESPCI et E. Guazzelli MSC.

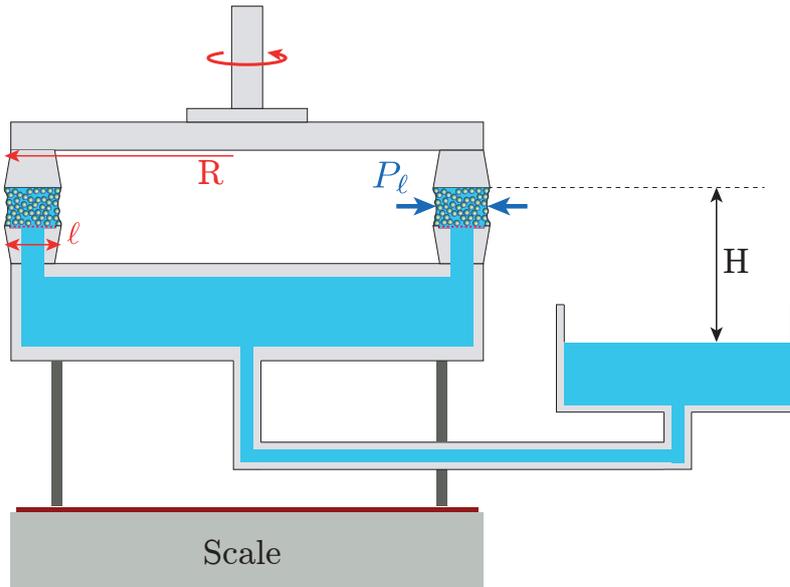


FIGURE 5.2 – Capillarytron en version annulaire afin d’imposer un taux de cisaillement et une pression granulaire homogènes.

fait l’hypothèse que l’échantillon a une symétrie parfaitement cylindrique, alors qu’en pratique la courbure du ménisque peut varier le long de la direction azimutale, et cela particulièrement à forte fraction volumique (ou faible  $J$ ). L’idée serait d’insérer un débitmètre de précision entre l’échantillon et le réservoir afin d’enregistrer tous les flux d’eau qui ont lieu lorsque la fraction volumique de l’échantillon évolue. Ce moyen devrait permettre de mieux suivre l’évolution de la fraction volumique. À noter cependant, que cette technique n’est envisageable que si les pertes de charge induites par le débitmètre restent relativement faibles afin de ne pas trop significativement augmenter la durée des transitoires nécessaires à l’adaptation de la fraction volumique.

### 5.2.3 Capillarytron annulaire

La dernière perspective que je propose aurait pour but de limiter l’inhomogénéité du taux de cisaillement et de la pression granulaire que l’on a en géométrie plan/plan. On a vu d’abord que très proche du jamming, la pression granulaire dans la direction normale devient parfois difficile à contrôler en imposant la pression au niveau de l’interface air/suspension. Cela est probablement dû à la géométrie très élancée avec un rapport d’aspect de la cellule  $2R/h \approx 100$  qui, proche du jamming, induit des effet de type Jansen qui viennent écranter la pression imposée au niveau de l’interface. Par ailleurs, nous avons aussi observé que lors de l’exploration de la branche frottante, des instabilités peuvent spontanément émerger. L’origine de ces instabilités est encore incertaine, mais elles pourraient apparaître du fait qu’en rhéologie plan/plan coexistent une zone non-frottante au centre des plateaux (où la pression granulaire et le taux de cisaillement sont faibles) et une zone frottante vers l’extérieur des plateaux (où la pression granulaire et le taux de cisaillement sont forts). Il est alors difficile pour le système d’assurer la continuité des contraintes. Pour palier à ce problème, je propose une

configuration rhéologique ‘plus propre’ de type géométrie annulaire tel que présentée sur la figure 5.2. Cette configuration pourrait présenter plusieurs avantages sur la configuration plan/plan. D’abord, la pression granulaire serait plus homogène car contrôlée cette fois par les deux interfaces capillaires de part et d’autre de l’échantillon. Ensuite, si le rapport  $R/\ell$  est suffisamment grand, le taux de cisaillement au sein de l’échantillon serait quasi-constant. Une telle configuration permettrait aussi de minimiser la quantité de suspension nécessaire pour effectuer des tests rhéologiques, problématique parfois limitante lorsque les suspensions considérées sont des prototypes de laboratoire synthétisés en très faible quantité.

---

## Appendix : Articles en préparation

---

Nous envisageons que l'ensemble des résultats de ma thèse puisse être publié sous la forme de deux articles. Le premier, en cours de rédaction (cf. draft suivant), sera soumis au journal *PNAS* pour présenter le Capillarytron, sa preuve de concept et les résultats principaux du chapitre 4. On envisage aussi un deuxième article, plus long et plus spécialisé, pour le journal *Journal of Fluid Mechanics* et qui sera basé sur le contenu des chapitres 2 et 3.

# The capillarytron: a new rheometer to probe the frictional rheology of colloidal suspensions

Bruno Etcheverry<sup>a,1</sup>, Yoël Forterre<sup>a</sup>, and Bloen Metzger<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Aix Marseille Univ, CNRS, IUSTI UMR 7343, 13453 Marseille, France.

This manuscript was compiled on May 19, 2022

| soft matter | colloidal suspensions | shear thickening | friction |

## Introduction

During the last decade, a large consensus has grown about the key role played by frictional particle contacts in colloidal suspensions. This turnabout has led to major advances in the field. In particular, the discontinuous shear-thickening rheology of certain dense suspensions, which long remained a major puzzle, can now be simply understood and rationalized as a frictional transition [1–3]. The suspension thickens beyond a critical stress that is necessary to push the particles, repulsive in nature, into frictional solid contact. Considering the effect of solid contacts also led to the emergence of new research areas. One of them is the possibility now to control the suspension rheology while in application, either by means of a biaxial shear [4] or by applying external vibrations [5, 6]. These external levers can be used to lower *in situ* the fraction of frictional contacts, which dramatically impacts the suspension rheology. Another emerging field, with many exciting application opportunities, relies on engineering of the particle surface properties so that specific rheological characteristics are imparted to the suspension. This can be done by tuning the roughness and/or friction of the particles at the nanoscale [7], or by controlling the nature of the inter-particle interactions with custom polymer coatings or repulsive electrostatic charges [8]. Along this line of research, the adjunction of superplasticizers (polymers) in the formulation of modern concretes, which long remained a completely empirical technique, is now also interpreted within the frictional transition framework [9, 10].

The above examples put forward the strong link between *tribology* and *rheology* – in colloidal suspensions, the nature of inter-particle contacts, at the nano-scale, is crucial to understanding and potentially controlling the suspension macroscopic rheological behavior. This recent breakthrough is presently the subject of intense research, however it suffers from the lack of appropriate rheological tools to characterize the frictional behavior of colloidal suspensions. The inter-particle friction  $\mu_p$  and the suspension friction coefficient  $\mu$  are now important quantities one obviously needs to access. Several studies, using classical or advanced AFM techniques, successfully probed the friction coefficient of individual particles taken from shear thickening suspensions and showed their friction coefficient is stress dependent [7, 11]. However, the complete *in situ* characterization of the suspension frictional behavior remains inaccessible. Classical rheological techniques, which are performed under fixed volume fraction  $\phi$ , only provide information about the suspension shear rate  $\dot{\gamma}$ , shear stress  $\tau$ , and viscosity  $\eta$ . The suspension frictional properties are accessible in configurations where the particle pressure

$P_p$  is imposed, e.g. such as that of a granular layer flowing under gravity [12]. Very recent experiments performed in a rotating drum [13] and on an inclined plane [14] were able to reveal the frictional transition at the origin of shear thickening. However, the major drawbacks of these configurations are that the former can only explore the quasistatic regime and in both configurations, the particle pressure cannot be varied as it is set by gravity. In Clavaud et al. [15], the particle pressure could be varied and controlled using an external Darcy vertical flow through the granular pile, but again this configuration is limited to quasi-static measurements. Importantly, in the existing particle pressure rheometer [16], for which the pressure is applied through a rotating rigid grid, the particle diameter must be larger than 300  $\mu\text{m}$ . This device is therefore not suited to shear thickening and colloidal suspensions whose particles are much smaller.

In the present study, we develop a new rheometer: the Capillarytron, which through a direct control of the particle pressure, gives access to the frictional constitutive flow rules of colloidal suspensions. This device is based on a new concept in rheometry since to impose the particle pressure, instead of using a rigid rotating grid as in Boyer *et al.* [16], here the particle pressure is imposed by the air/suspension capillary interface. After presenting the concept of this new rheometer, we first validate its application by investigating a well known suspension of macroscopic frictional spheres. We then investigate a model shear thickening suspension of silica particles where both frictional contacts and short range repulsive interactions are simultaneously at play. To our knowledge, these results constitute the first experimental data set which fully and directly validates the frictional transition scenario recently proposed to explain shear thickening in colloidal suspensions. Finally, we use the Capillarytron to explore the frictional signatures of various colloidal suspensions. These results directly

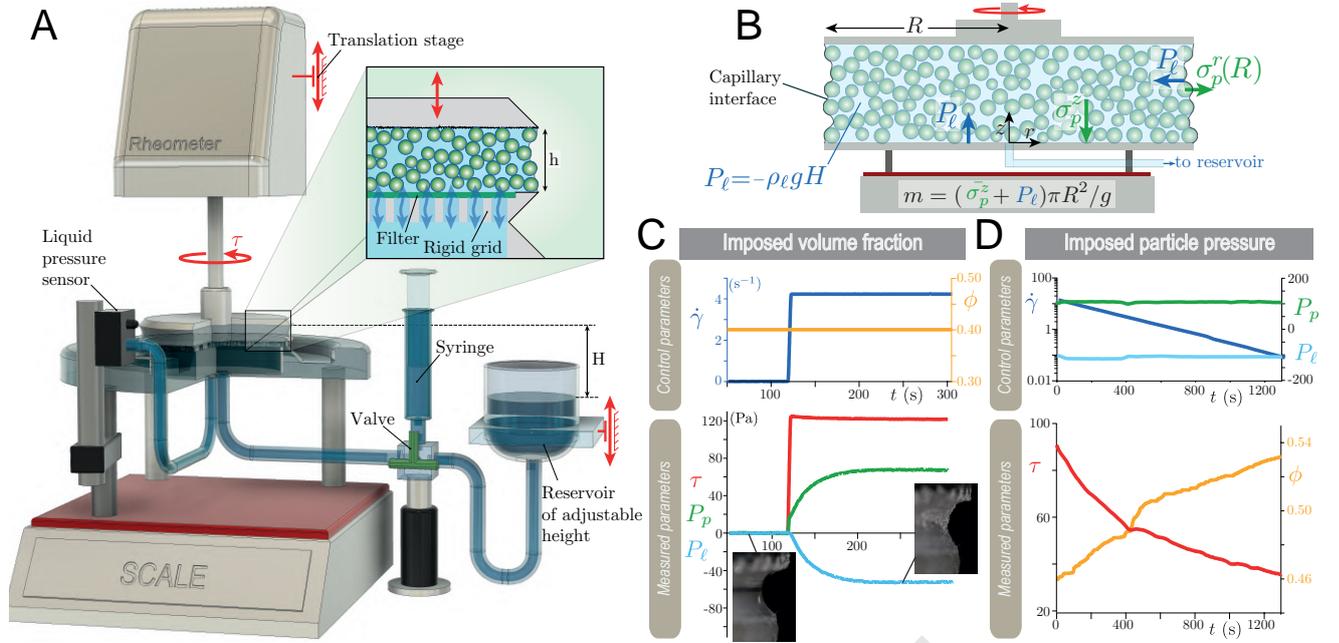
## Significance Statement

A large consensus has recently emerged about the key role played by frictional particle contacts in colloidal suspensions. However, no rheological tools exist to characterize the frictional behavior of these suspensions. Here, we develop a new rheometer giving access to the frictional constitutive flow rules of colloidal suspensions. Based on a new concept in rheometry, this device opens the route to pressure-imposed rheology on colloidal and Brownian particles - a new frontier in the field and a challenge for industrials.

C.C., A.B., B.M. and Y.F. designed the research, performed the research, analyzed data and wrote the paper.

The authors declare no conflict of interest.

<sup>1</sup>To whom correspondence should be addressed. E-mail: cecile.clavaud@univ-amu.fr



**Fig. 1. Capillarytron: the concept** (A) Sketch of the Capillarytron. A reservoir of adjustable height is connected to the suspension through a permeable grid to impose a negative liquid pressure: here the capillary interface is used to impose the particle pressure. (B) Schematic of the horizontal and vertical force balances in steady state: in the radial direction and at the air/suspension capillary interface, the particle pressure  $\sigma_p^r(R)$  is balanced by the liquid pressure  $P_\ell$ . In the vertical direction, the mass  $m$  measured with the scale results from the contribution of the mean particle stress in the vertical direction  $\bar{\sigma}_p^z$  and the liquid pressure  $P_\ell$ . (C) Typical experiment under volume imposed condition (valve closed). The liquid pressure becomes negative as a result of the particle stress developed by the dilatant suspension. (D) Typical experiment under pressure imposed condition (valve open). Under constant shear rate and upon a sudden increase of particle pressure, the shear stress and the volume fraction self-adjust to a new steady state.

highlight how specific particle surface properties can lead to various macroscopic frictional rheologies.

### The Capillarytron: the concept

The concept of the Capillarytron stems from an intrinsic property of particulate suspensions, namely that under shear, particle suspensions are dilatant. This means that sheared suspensions spontaneously develop particle normal stresses  $\sigma_p$ , which tend to deform and corrugate the capillary air/suspension interface. The concept of the capillarytron lies in reversing this situation, precisely by using the capillary interface to impose the particle pressure.

A sketch of the capillarytron is shown in Figure 1A. It is based on a classical plane/plane rheometric configuration where the suspension is sheared between two rough disks of radius  $R = 25$  mm spaced by a variable gap of height  $h$ . The upper plane is driven in rotation by an Anton Paar DSR 502 rheometer head which allows us to control the shear stress  $\tau$ . One originality of this device is that the lower plane is porous. Made out of a rigid grid covered with a fine mesh smaller than the particle diameter, the porous bottom plane is permeable to the suspending fluid but impermeable to the particles. The liquid chamber below the grid is connected to a differential liquid pressure sensor, which provides the liquid pressure  $P_\ell$  within the suspension [17]. Importantly, the liquid chamber below the grid is also connected to a reservoir of adjustable height  $H$ . By varying the height of this reservoir, we can control the liquid pressure  $P_\ell = -\rho_\ell g H$  within the sample, where  $\rho_\ell$  is the liquid density and  $g$  denotes gravity. The essence of the capillarytron is that by adjusting the liquid

pressure, we control the radial stress exerted by the capillary interface on the granular phase, see Fig. 1B. During shear, the steady state radial force balance at the capillary interface prescribes that

$$\sigma_p^r(R) + P_\ell = 0, \quad [1]$$

where  $\sigma_p^r(R)$  is the particle radial stress at the capillary interface, for  $r = R$ . The second originality of this device is that the bottom part of the set-up rests on a precision scale, which is used as a vertical force sensor. The mass  $m$  measured with the scale (which is set to zero prior to the experiment for the suspension at rest, i.e. for  $\dot{\gamma} = 0$ ) results from the contributions of both the mean vertical particle pressure  $\bar{\sigma}_p^z$  and the liquid pressure  $P_\ell$ , such that

$$mg = (\bar{\sigma}_p^z + P_\ell)\pi R^2. \quad [2]$$

From the value of the liquid pressure  $P_\ell$  and the measured mass  $m$ , one can easily access the mean particle pressure in the vertical direction  $\bar{\sigma}_p^z$ , which by definition corresponds to the particle pressure  $P_p \equiv \bar{\sigma}_p^z$  needed to compute the suspension macroscopic friction coefficient  $\mu = \tau/P_p$ .

The dilatant nature of suspension and the resulting forces involved during dilation can first be well illustrated under fixed volume fraction, see Fig. 1C. Here, the valve is used to close the connection between the suspension and the reservoir: the suspension volume fraction is thus fixed. We start from rest ( $\dot{\gamma} = 0$ ) and set to zero both the fluid pressure and the mass. For this reference initial condition, one observes that the air/suspension interface is very smooth, see image Inserts of Fig. 1C. Upon increasing the suspension shear rate  $\dot{\gamma}$  to a finite value, the dilatant suspension develops positive

249 particle stresses which corrugate the air/suspension interface.  
 250 As a result, the liquid pressure  $P_\ell$  inside the sample becomes  
 251 negative.

252 The novelty of the Capillarytron lies in giving the possibility  
 253 to invert controlled and measured parameters relative to the  
 254 previous volume imposed configuration. In its imposed particle  
 255 pressure configuration, i.e. when the valve is open, by adjusting  
 256 the height  $H$  of the reservoir, we now control the particle  
 257 pressure in the radial direction with the capillary interface.  
 258 Figure 1D shows the evolution of the suspension under a  
 259 constant applied shear rate and under a step increase of particle  
 260 pressure. This time, the volume fraction  $\phi$  and the shear stress  
 261 self-adjust until reaching a new steady state for which Eqn. 1  
 262 and 2 are also verified. Note that, under changes of particle  
 263 pressure, the volume fraction evolves and thus the total volume  
 264 of the sample. To maintain the air/suspension interface flat  
 265 and at the location  $r = R$ , we adjust the gap  $h$  using the high  
 266 precision translation stage mounted on the rheometer head.  
 267 The value of  $h$ , insuring that the suspension actually fills the  
 268 whole gap, is used to compute the evolution of the suspension  
 269 volume fraction, given that  $\phi = V_p/\pi R^2 h$  where  $V_p$  denotes  
 270 the initial and constant volume occupied by the particles.

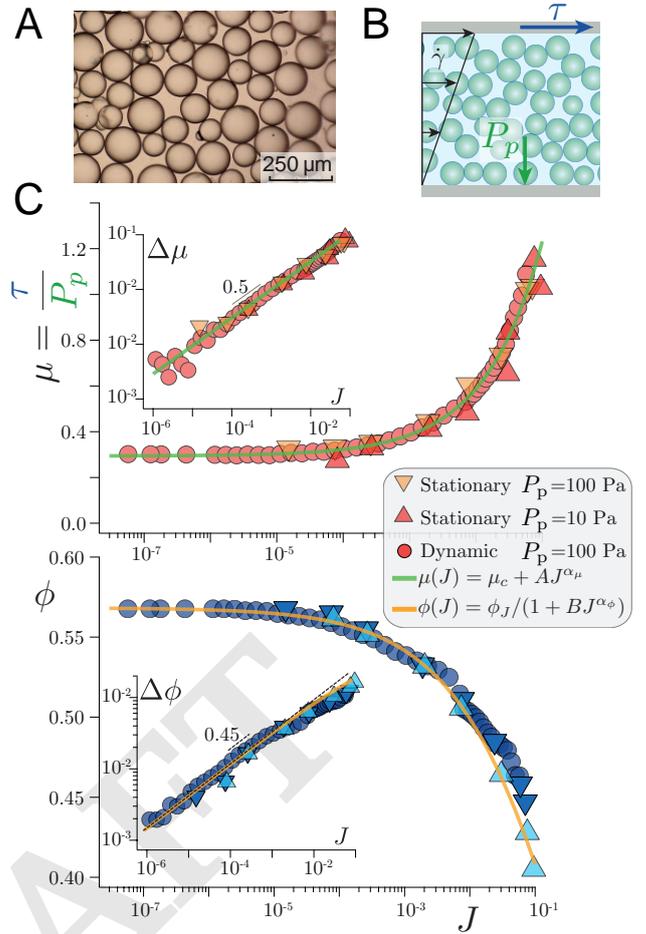
271 The Capillarytron presents several advantages. First, it  
 272 directly gives access to the suspension friction coefficient  
 273  $\mu = \tau/P_p$ , a quantity inaccessible to conventional rheology.  
 274 Second, using a pressure imposed configuration circumvents  
 275 the divergences observed in  $\phi$ -imposed rheology, thereby al-  
 276 lowing to study very dense suspension close to the jamming  
 277 transition and where shear thickening occurs. Third, it is par-  
 278 ticularly adapted to investigate colloidal suspensions in which  
 279 particles interact through a short range repulsive force  $F_{rep}$ .  
 280 Indeed, in such case, the dimensionless number  $P_p d^2/F_{rep}$ ,  
 281 characterizing the frictional state of the system [3, 15], can be  
 282 varied independently.

283 In the following, we start by validating the proof of concept  
 284 of the Capillarytron on a suspension of frictional macroscopic  
 285 particles.

286

### 287 The Capillarytron: Proof of concept

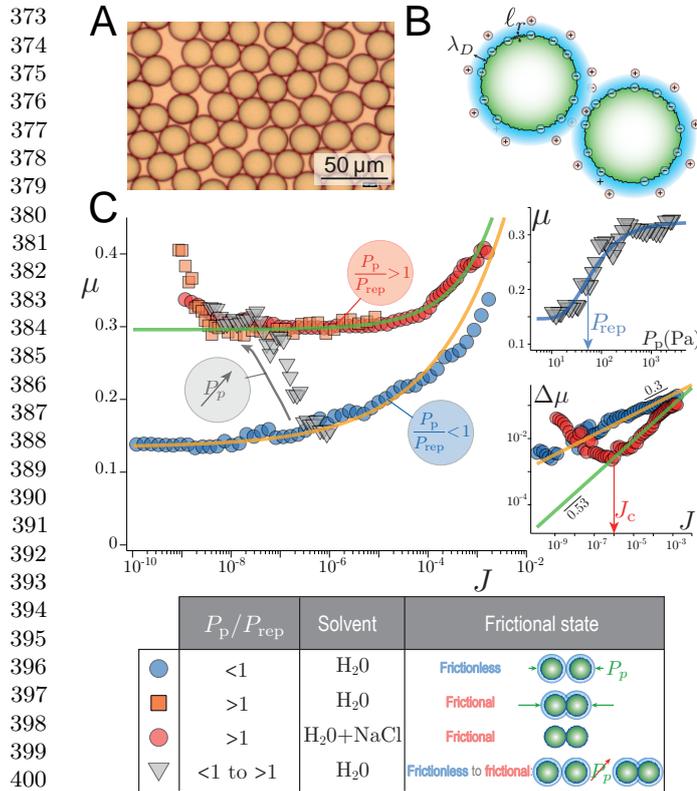
288 We first measure the frictional constitutive laws of a suspension  
 289 of macroscopic PMMA particles ( $d = 150 \pm 7 \mu\text{m}$ , see Fig. 2A)  
 290 immersed in a viscous and Newtonian liquid (Tritton X100,  
 291  $\eta_\ell = 0.27 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ). In this case, particles only interact through  
 292 hydrodynamics and frictional solid contacts. The rheology  
 293 is thus rate-independent and the frictional laws  $[\mu(J), \phi(J)]$   
 294 are well-known [16] and depend on a unique dimensionless  
 295 number  $J = \eta_\ell \dot{\gamma}/P_p$  [18] (see Fig. 2B for the definition of  
 296 the relevant variables). In Figure 2C, we show the constitutive laws  
 297 obtained with the Capillarytron under fixed particle pressure  
 298 and varying  $J$  using either successive steady decreasing values  
 299 of shear rates or a quasi-steady decreasing ramp of shear rate  
 300 (see Methods section for details on the protocols). The data can  
 301 be very well fitted by the simple expressions  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$   
 302 and  $\phi(J) = \phi_J/(1 + BJ^{\alpha_\phi})$ , yielding to  $\mu_c = 0.30$ ,  $A = 2.99$ ,  
 303  $\alpha_\mu = 0.50$ ,  $\phi_J = 0.57$ ,  $B = 1.10$  and  $\alpha_\phi = 0.45$  parameters  
 304 which are in good agreement with previous measurements [16]  
 305 and theoretical predictions [19] for such a frictional granular  
 306 suspension. As expected, in this system, where particles  
 307 interact through Coulombic frictional contacts, performing  
 308 measurements under different applied particle pressures (10  
 309 or 100 Pa) leads to the same results. The quasi-static friction



311 **Fig. 2. Capillarytron: proof of concept** (A) Picture of the PMMA particles of diameter,  
 312  $d = 150 \pm 7 \mu\text{m}$ . (B) Schematic defining the relevant variables for the frictional  
 313 rheology: shear stress  $\tau$ , particle pressure  $P_p$  and shear rate  $\dot{\gamma}$  to compute the  
 314 suspension macroscopic friction coefficient  $\mu = \tau/P_p$  and the viscous number  
 315  $J = \eta_\ell \dot{\gamma}/P_p$ . (C) Frictional rheological laws: (Top) Suspension friction coefficient  
 316  $\mu$  and (Bottom) suspension volume fraction  $\phi$  versus viscous number  $J$  obtained  
 317 from steady state measurements and quasi-steady decreasing ("dynamic") ramps of  
 318 shear rate. Measurements performed under a fixed particle pressure of  $P_p = 10$   
 319 and 100 Pa lead to the same results. The data is fitted by  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$   
 320 and  $\phi(J) = \phi_J/(1 + BJ^{\alpha_\phi})$  with  $\mu_c = 0.30$ ,  $A = 2.99$ ,  $\alpha_\mu = 0.50$ ,  
 321  $\phi_J = 0.57$ ,  $B = 1.10$  and  $\alpha_\phi = 0.45$ . Inserts: (Top) Reduced macroscopic  
 322 friction coefficient  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  and (Bottom) change of volume fraction relative  
 323 to jamming  $\Delta\phi = \phi_J - \phi$  versus  $J$ .

324 coefficient  $\mu_c = 0.30$  obtained for vanishing  $J$  (at jamming)  
 325 indicates that the particles are frictional. Both Inserts, showing  
 326 the reduced macroscopic friction coefficient  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  and  
 327 the change of volume fraction relative to jamming  $\Delta\phi = \phi_J - \phi$   
 328 versus  $J$ , indicate that the dynamic contribution to the  
 329 frictional laws can be well approximated by simple power-law  
 330 functions over a very large range of the viscous number  $J$ .

331 The above results show that the Capillarytron constitute  
 332 an efficient and accurate rheological tool to characterize the  
 333 friction laws of particulate suspensions. We thus now turn to  
 334 a model shear-thickening suspension of silica particles immersed  
 335 in water solutions.



**Fig. 3. Macroscopic friction coefficient of a model shear thickening suspension** (A) Picture of the silica particles,  $d = 23.46 \pm 1.06 \mu m$ . (B) Schematic of the silica particles illustrating the electrostatic double-layer at the origin of the short range repulsive force, the Debye Length  $\lambda_D$  and the particle roughness  $\ell_r$ . (C) Macroscopic friction coefficient versus  $J$  for measurement performed at low particle pressure ( $P_p = 5$  Pa,  $P_p < P_{rep}$ ), large particle pressure ( $P_p \approx 500$  Pa,  $P_p > P_{rep}$ ), in a solution of water and NaCl ( $[NaCl] = 0.2$  mol.L $^{-1}$ ,  $P_p > P_{rep}$ ), and for an increasing ramp of particle pressure ( $P_p = 10$  to 2600 Pa,  $P_p < P_{rep}$  to  $P_p > P_{rep}$ ). Inserts: (Top) Macroscopic friction coefficient  $\mu$  versus  $P_p$ . (Bottom) Reduced macroscopic friction coefficient  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  versus  $J$ .

### The Capillarytron: macroscopic friction of a model shear thickening suspension

We now investigate the frictional behavior of a model shear-thickening suspension of silica particles ( $d = 23.46 \pm 1.06 \mu m$ , see Fig. 3A) immersed in a water solution. Silica particles immersed in water, spontaneously develop negative surface charges, which generate an electrostatic repulsive force between the grains [20]. This force, under low particle stress, prevents particles from making solid contact (Fig. 3B): particles thus virtually behave as if frictionless [2, 11, 13]. Here, with the Capillarytron, the interparticle friction can be turned on in two ways. Either, as in [13, 14], simply by dissolving a sufficient amount of electrolyte (NaCl) in the water solution, which decreases  $\lambda_D$  below the particle roughness. Or, as in [15], by increasing the particle pressure  $P_p$  above the critical repulsive pressure  $P_{rep} = F_{rep}/d^2$  that the short range repulsive forces can withstand. The major contribution of the Capillarytron is that, while previous measurements were limited to the quasi-static regime ( $J \rightarrow 0$ ) [13, 15], of to fixed particle pressure conditions [13, 14], we can now explore the frictional constitutive laws of shear-thickening colloidal suspensions with the possibility of varying  $J$ ,  $P_p$  and  $P_{rep}$  independently. This pro-

vides ideal conditions to study such systems whose frictional rheological laws  $[\mu(J, P_p/P_{rep}), \phi(J, P_p/P_{rep})]$  now depend on the two dimensionless number  $J$  and  $P_p/P_{rep}$  [15? ].

Figure 3C show the suspension friction coefficient  $\mu$  versus  $J$  obtained i) under low particle pressure  $P_p/P_{rep} < 1$  (blue circles), ii) under large particle pressure  $P_p/P_{rep} > 1$  (orange squares), iii) in a water/NaCl solution with a concentration of  $[NaCl] = 0.2$  mol.L $^{-1}$  sufficient to screen the repulsive force between particles such that  $P_p/P_{rep} > 1$  (red circles), and iv) in pure water for an increasing ramp of particles pressure (grey triangles). Under low particle pressure (Blue circles), the data can be well fitted by the expression  $\mu(J) = \mu_c + AJ^{\alpha_\mu}$ . The value of the quasi static friction coefficient  $\mu_c = 0.13$  is very close to 0.1, indicating that particles behave essentially as frictionless grains [13, 14, 21]. Increasing  $P_p$  above  $P_{rep} \approx 53$  Pa [15] or introducing a sufficient amount of NaCl to the solution, leads to very similar  $\mu(J)$  curves (orange squares and red circles), where this time  $\mu_c = 0.3$ , value equal to that obtained previously with the suspension of macroscopic frictional particles in Fig. 2C. Finally, under a constant shear rate, progressively increasing the particle pressure from below to above  $P_{rep}$  leads to a smooth transition from the frictionless to the frictional curves (grey triangles). The same data, plotted versus  $P_p$  in the (Top) Insert, highlights the frictional transition occurs around  $P_p/P_{rep} = 1$ .

Two more interesting features can be observed from this Figure. First, the frictional and the frictionless constitutive laws do not follow the same power law of  $J$ . As highlighted in the (Bottom) Insert of Fig. 3C, the reduced macroscopic friction coefficient  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$  follows a power law of  $J$  with an exponent  $\alpha_\mu \approx 0.3$  for frictionless grains (blue circles) and  $\alpha_\mu \approx 0.5$  when friction is activated (red circles), in good agreement with previous measurements [14] and theoretical predictions [19]. Second, while the frictionless curve  $\mu(J)$  follows a monotonic trend with  $J$ , the frictional curve  $\mu(J)$  is clearly non-monotonic and presents a minimum around  $J_c \approx 10^{-6}$ , see (Bottom) Insert of Fig. 3C. This non-monotonic trend was suggested by previous measurements of the avalanche angle in a rotating drum [14]. However, here by controlling the applied shear rate, we can directly access and characterize the unstable (velocity weakening) part of the flow curve. Note that the velocity weakening part of  $\mu(J)$  can be observed here (unlike in Figure 2C) because the suspending liquid, having a lower viscosity, allows us to explore much smaller values of  $J$ , as small as  $J = 10^{-10}$ .

By varying both dimensionless parameters controlling the system, namely  $J$  and  $P_p/P_{rep}$ , both frictional and frictionless flow rules of a model shear thickening suspension of silica particles could be quantified. To our knowledge, Figure 3C constitutes the first experimental data set which fully and directly validates the frictional transition scenario recently proposed to explain shear thickening in colloidal suspensions. In addition, these measurements provide scaling laws over a wide range of  $J$  and reveal an as yet unpredicted phenomenon of velocity-weakening at small  $J$  in frictional systems.

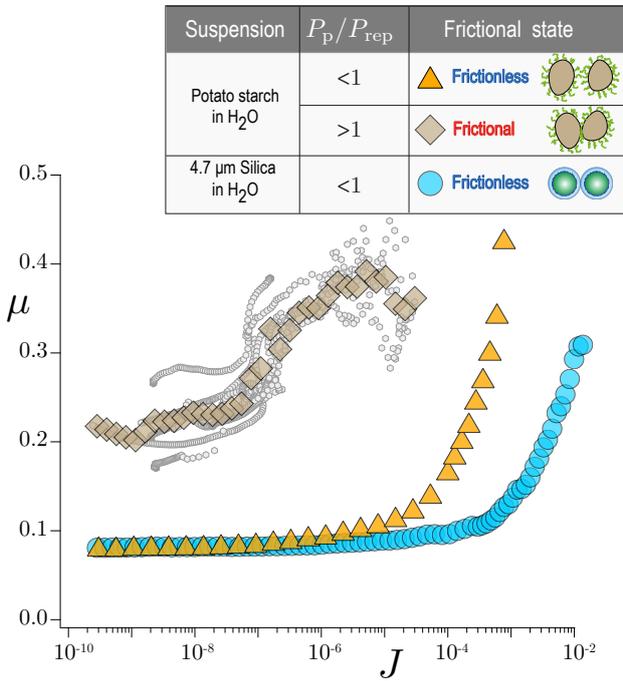
### Frictional signatures of various colloidal suspensions

In this last section, we take advantage of the Capillarytron to investigate the frictional signature of various colloidal suspensions.

497 **Discussion**

498 **Materials and Methods**

499 The data in this paper are available on demand by contacting the  
500 corresponding author.  
501  
502  
503  
504



513 **Fig. 4. Frictional signatures of various colloidal suspensions .**

514  
515  
516  
517  
518  
519  
520  
521  
522  
523  
524  
525  
526  
527  
528  
529  
530  
531  
532  
533 1. Seto R, Mari R, Morris JF, Denn MM (2013) Discontinuous shear thickening of frictional hard-  
534 sphere suspensions. *Phys. Rev. Lett.* 111:218301.  
535 2. Mari R, Seto R, Morris JF, Denn MM (2014) Shear thickening, frictionless and frictional rheo-  
536 logies in non-brownian suspensions. *Journal of Rheology* 58(6):1693–1724.  
537  
538  
539  
540  
541  
542  
543  
544  
545  
546  
547  
548  
549  
550  
551  
552  
553  
554  
555  
556  
557  
558

**ACKNOWLEDGMENTS.** This work was supported by the Euro-  
559 pean Research Council under the European Union Horizon 2020  
560 Research and Innovation programme (ERC grant agreement No.  
561 647384 ) and by the Labex MEC (ANR-10-LABX-0092) under the  
562 A\*MIDEX project (ANR-11-IDEX-0001-02) funded by the French  
563 government program Investissements d’Avenir.  
564  
565  
566

567 3. Wyart M, Cates ME (2014) Discontinuous shear thickening without inertia in dense non-  
568 brownian suspensions. *Phys. Rev. Lett.* 112:098302.  
569 4. (year?)  
570 5. Sehgal P, Ramaswamy M, Cohen I, Kirby BJ (2019) Using acoustic perturbations to dynam-  
571 ically tune shear thickening in colloidal suspensions. *Physical review letters* 123(12):128001.  
572 6. Garat C, Kiesgen de Richter S, Lidon P, Colin A, Ovarlez G (2022) Using good vibrations:  
573 Melting and controlled shear jamming of dense granular suspensions. *Journal of Rheology*  
574 66(2):237–256.  
575 7. Hsu CP, Ramakrishna SN, Zanini M, Spencer ND, Isa L (2018) Roughness-dependent tribo-  
576 logy effects on discontinuous shear thickening. *Proceedings of the National Academy of*  
577 *Sciences* 115(20):5117–5122.  
578 8. Moratille Y et al. (2022) Cross-linked polymer microparticles with tunable surface properties  
579 by the combination of suspension free radical copolymerization and click chemistry. *Journal*  
580 *of Colloid and Interface Science* 607:1687–1698.  
581 9. Richards JA, O’Neill RE, Poon WC (2021) Turning a yield-stress calcite suspension into a  
582 shear-thickening one by tuning inter-particle friction. *Rheologica Acta* 60(2):97–106.  
583 10. Bossis G, Grasselli Y, Volkova O (2021) Capillary flow of a suspension in the presence of  
584 discontinuous shear thickening. *Rheologica Acta* pp. 1–12.  
585 11. Comtet J et al. (2017) Pairwise frictional profile between particles determines discontinuous  
586 shear thickening transition in non-colloidal suspensions. *Nature communications* 8(1):1–7.  
587 12. gdrmidi@ polytech. univ-mrs. fr http://www. lmgc. univ-montp2. fr/MIDI/ GM (2004) On dense  
588 granular flows. *The European Physical Journal E* 14:341–365.  
589 13. Clavaud C, Béruit A, Metzger B, Forterre Y (2017) Revealing the frictional transition in shear-  
590 thickening suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 114(20):5147–  
591 5152.  
592 14. Perrin H, Clavaud C, Wyart M, Metzger B, Forterre Y (2019) Interparticle friction leads to  
593 nonmonotonic flow curves and hysteresis in viscous suspensions. *Physical Review X*  
594 9(3):031027.  
595 15. Clavaud C, Metzger B, Forterre Y (2020) The darcytron: A pressure-imposed device to probe  
596 the frictional transition in shear-thickening suspensions. *Journal of Rheology* 64(2):395–403.  
597 16. Boyer F, Guazzelli É, Pouliquen O (2011) Unifying suspension and granular rheology. *Physical*  
598 *Review Letters* 107(18):188301.  
599 17. Dbouk T, Lobry L, Lemaire E (2013) Normal stresses in concentrated non-brownian suspen-  
600 sions. *Journal of Fluid Mechanics* 715:239–272.  
601 18. Guazzelli É, Pouliquen O (2018) Rheology of dense granular suspensions. *Journal of Fluid*  
602 *Mechanics* 852.  
603 19. DeGiuli E, Düring G, Lerner E, Wyart M (2015) Unified theory of inertial granular flows and  
604 non-brownian suspensions. *Physical Review E* 91(6):062206.  
605 20. Israelachvili JN (2011) *Intermolecular and surface forces.* (Academic press).  
606 21. Peyneau PE, Roux JN (2008) Frictionless bead packs have macroscopic friction, but no dilata-  
607 tancy. *Physical review E* 78(1):011307.  
608  
609  
610  
611  
612  
613  
614  
615  
616  
617  
618  
619  
620

- [1] Phillip FG Banfill et al. The rheology of fresh cement and concrete-a review. In *Proceedings of the 11th international cement chemistry congress*, volume 1, pages 50–62, 2003.
- [2] Philippe Coussot. *Mudflow rheology and dynamics*. Routledge, 2017.
- [3] GDO Lowe. Nature and clinical importance of blood rheology. In *Clinical blood rheology*, pages 1–10. CRC Press, 2019.
- [4] Elena Blanco, Daniel JM Hodgson, Michiel Hermes, Rut Besseling, Gary L Hunter, Paul M Chaikin, Michael E Cates, Isabella Van Damme, and Wilson CK Poon. Conching chocolate is a prototypical transition from frictionally jammed solid to flowable suspension with maximal solid content. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 116(21) :10303–10308, 2019.
- [5] Georges Bossis, Pascal Boustingorry, Yan Grasselli, Alain Meunier, Romain Morini, Audrey Zubarev, and Olga Volkova. Discontinuous shear thickening in the presence of polymers adsorbed on the surface of calcium carbonate particles. *Rheologica Acta*, 56(5) :415–430, 2017.
- [6] Valery G Kulichikhin and Alexander Ya Malkin. The role of structure in polymer rheology. *Polymers*, 14(6) :1262, 2022.
- [7] Denis Weaire. The rheology of foam. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 13(3) :171–176, 2008.
- [8] Sung Wu Joh, Seung Hwan Lee, and Jae Ryoum Youn. Rheological behavior of polydispersed bubble suspensions in shear flows. *Polymer Engineering & Science*, 50(1) :128–137, 2010.
- [9] G Bossis and JF Brady. The rheology of brownian suspensions. *The Journal of chemical physics*, 91(3) :1866–1874, 1989.
- [10] Morton M Denn and Jeffrey F Morris. Rheology of non-brownian suspensions. *Annual review of chemical and biomolecular engineering*, 5 :203–228, 2014.
- [11] Elie Nader, Sarah Skinner, Marc Romana, Romain Fort, Nathalie Lemonne, Nicolas Guillot, Alexandra Gauthier, Sophie Antoine-Jonville, Céline Renoux, Marie-Dominique

- Hardy-Dessources, et al. Blood rheology : key parameters, impact on blood flow, role in sickle cell disease and effects of exercise. *Frontiers in physiology*, page 1329, 2019.
- [12] David Saintillan. Rheology of active fluids. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 50 :563–592, 2018.
- [13] Albert Einstein. *Eine neue bestimmung der moleküldimensionen*. PhD thesis, ETH Zurich, 1905.
- [14] Etienne Guyon, Jean-Pierre Hulin, and Luc Petit. *Hydrodynamique physique*. Savoirs actuels. InterEditions, Paris, 1991.
- [15] GK Batchelor. The effect of brownian motion on the bulk stress in a suspension of spherical particles. *Journal of fluid mechanics*, 83(1) :97–117, 1977.
- [16] Élisabeth Guazzelli and Olivier Pouliquen. Rheology of dense granular suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 852, 2018.
- [17] Irvin M Krieger. Rheology of monodisperse latices. *Advances in Colloid and Interface science*, 3(2) :111–136, 1972.
- [18] F Ferrini, D Ercolani, B De Cindio, L Nicodemo, L Nicolais, and S Ranaudo. Shear viscosity of settling suspensions. *Rheologica Acta*, 18(2) :289–296, 1979.
- [19] Irvin M Krieger and Thomas J Dougherty. A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Transactions of the Society of Rheology*, 3(1) :137–152, 1959.
- [20] François Boyer, Élisabeth Guazzelli, and Olivier Pouliquen. Unifying suspension and granular rheology. *Physical Review Letters*, 107(18) :188301, 2011.
- [21] Talib Dbouk, Laurent Lobry, and Elisabeth Lemaire. Normal stresses in concentrated non-brownian suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 715 :239–272, 2013.
- [22] Franco Tapia, Olivier Pouliquen, and Elisabeth Guazzelli. The influence of surface roughness on the rheology of immersed and dry frictional spheres. *eprint arXiv :1904.12633*, 2019.
- [23] M Trulsson, E DeGiuli, and M Wyart. Effect of friction on dense suspension flows of hard particles. *Physical Review E*, 95(1) :012605, 2017.
- [24] Romain Mari, Ryohei Seto, Jeffrey F Morris, and Morton M Denn. Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 58(6) :1693–1724, 2014.
- [25] Frédéric Blanc, Enzo D’Ambrosio, Laurent Lobry, François Peters, and Elisabeth Lemaire. Universal scaling law in frictional non-brownian suspensions. *Physical Review Fluids*, 3(11) :114303, 2018.
- [26] Martin Trulsson. Rheology and shear jamming of frictional ellipses. *Journal of Fluid Mechanics*, 849 :718–740, 2018.
- [27] Sidhant Pednekar, Jaehun Chun, and Jeffrey F Morris. Bidisperse and polydisperse suspension rheology at large solid fraction. *Journal of Rheology*, 62(2) :513–526, 2018.

- [28] Leonardo E Silbert. Jamming of frictional spheres and random loose packing. *Soft Matter*, 6(13) :2918–2924, 2010.
- [29] E DeGiuli, G Düring, E Lerner, and M Wyart. Unified theory of inertial granular flows and non-brownian suspensions. *Physical Review E*, 91(6) :062206, 2015.
- [30] John F Brady and Georges Bossis. Stokesian dynamics. *Annual review of fluid mechanics*, 20(1) :111–157, 1988.
- [31] Louis J Durlofsky and John F Brady. Dynamic simulation of bounded suspensions of hydrodynamically interacting particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 200 :39–67, 1989.
- [32] G Bossis and John F Brady. Self-diffusion of brownian particles in concentrated suspensions under shear. *The Journal of chemical physics*, 87(9) :5437–5448, 1987.
- [33] C Cassar, M Nicolas, and O Pouliquen. Submarine granular flows down inclined planes. *Physics of fluids*, 17(10) :103301, 2005.
- [34] Simon Dagois-Bohy, Sarah Hormozi, Élisabeth Guazzelli, and Olivier Pouliquen. Rheology of dense suspensions of non-colloidal spheres in yield-stress fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, 776, 2015.
- [35] Emilien Azema, Farhang Radjai, and Jean-Noël Roux. Internal friction and absence of dilatancy of packings of frictionless polygons. *Physical Review E*, 91(1) :010202, 2015.
- [36] Olivier Pouliquen, Cyril Cassar, Pierre Jop, Yoel Forterre, and Maxime Nicolas. Flow of dense granular material : towards simple constitutive laws. *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, 2006(07) :P07020, 2006.
- [37] Pierre Jop, Yoël Forterre, and Olivier Pouliquen. Crucial role of sidewalls in granular surface flows : consequences for the rheology. *Journal of Fluid Mechanics*, 541 :167–192, 2005.
- [38] Edan Lerner, Gustavo Düring, and Matthieu Wyart. A unified framework for non-brownian suspension flows and soft amorphous solids. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 109(13) :4798–4803, 2012.
- [39] Hugo Perrin, Cécile Clavaud, Matthieu Wyart, Bloen Metzger, and Yoël Forterre. Interparticle friction leads to non-monotonic flow curves and hysteresis in viscous suspensions. *arXiv preprint arXiv :1904.03918*, 2019.
- [40] Hugo Perrin, Matthieu Wyart, Bloen Metzger, and Yoël Forterre. Nonlocal effects reflect the jamming criticality in frictionless granular flows down inclines. *Phys. Rev. Lett.*, 126 :228002, Jun 2021.
- [41] Ronald G Egres and Norman J Wagner. The rheology and microstructure of acicular precipitated calcium carbonate colloidal suspensions through the shear thickening transition. *Journal of rheology*, 49(3) :719–746, 2005.
- [42] Cécile Clavaud. *Rhéoépaississement des suspensions denses : mise en évidence de la transition frictionnelle*. PhD thesis, Aix-Marseille, 2018.
- [43] Spencer E Taylor. Rheology and structure of cornstarch suspensions in water-poly(propylene glycol) mixtures. *Journal of dispersion science and technology*, 34(7) :887–897, 2013.

- [44] Yasaman Madraki, Sarah Hormozi, Guillaume Ovarlez, Elisabeth Guazzelli, and Olivier Pouliquen. Enhancing shear thickening. *Physical Review Fluids*, 2(3) :033301, 2017.
- [45] Cécile Clavaud, Antoine Berut, Bloen Metzger, and Yoel Forterre. Suspensions rheo-epaississantes : Principes et applications. *Technique de l'ingénieur*, 1(3310), 2018.
- [46] Robert J Morgan. A study of the phenomenon of rheological dilatancy in an aqueous pigment suspension. *Transactions of the Society of Rheology*, 12(4) :511–533, 1968.
- [47] Loreto Oyarte Gálvez, Sissi de Beer, Devaraj van der Meer, and Adeline Pons. Dramatic effect of fluid chemistry on cornstarch suspensions : Linking particle interactions to macroscopic rheology. *Physical Review E*, 95(3) :030602, 2017.
- [48] James A Richards, Rory E O’Neill, and Wilson CK Poon. Turning a yield-stress calcite suspension into a shear-thickening one by tuning inter-particle friction. *Rheologica Acta*, 60(2) :97–106, 2021.
- [49] H Freundlich and HL Röder. Dilatancy and its relation to thixotropy. *Transactions of the Faraday Society*, 34 :308–316, 1938.
- [50] Ryohei Seto, Romain Mari, Jeffrey F Morris, and Morton M Denn. Discontinuous shear thickening of frictional hard-sphere suspensions. *Physical review letters*, 111(21) :218301, 2013.
- [51] Matthieu Wyart and ME Cates. Discontinuous shear thickening without inertia in dense non-brownian suspensions. *Physical review letters*, 112(9) :098302, 2014.
- [52] Jacob N Israelachvili. *Intermolecular and surface forces*. Academic press, 2011.
- [53] Seunghwan Lee and Nicholas D Spencer. Sweet, hairy, soft, and slippery. *Science*, 319(5863) :575–576, 2008.
- [54] Tharwat Tadros. *Colloid Stability :General Principles of Colloid Stability and the Role of Surface Forces*. John Wiley and Sons, Ltd, 2010.
- [55] PG De Gennes. Polymers at an interface ; a simplified view. *Advances in colloid and interface science*, 27(3-4) :189–209, 1987.
- [56] Jean Comtet, Guillaume Chatté, Antoine Niguès, Lydéric Bocquet, Alessandro Siria, and Annie Colin. Pairwise frictional profile between particles determines discontinuous shear thickening transition in non-colloidal suspensions. *Nature communications*, 8 :15633, 2017.
- [57] Pierre-Emmanuel Peyneau and Jean-Noël Roux. Frictionless bead packs have macroscopic friction, but no dilatancy. *Physical review E*, 78(1) :011307, 2008.
- [58] Cécile Clavaud, Bloen Metzger, and Yoël Forterre. The darcytron : A pressure-imposed device to probe the frictional transition in shear-thickening suspensions. *Journal of Rheology*, 64(2) :395–403, 2020.
- [59] Chiao-Peng Hsu, Shivaprakash N Ramakrishna, Michele Zanini, Nicholas D Spencer, and Lucio Isa. Roughness-dependent tribology effects on discontinuous shear thickening. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 115(20) :5117–5122, 2018.

- [60] Yoanh Moratille, Muhammad Arshad, Celine Cohen, Abdelhamid Maali, Elisabeth Lemaire, Nathalie Sintès-Zydowicz, and Eric Drockenmüller. Cross-linked polymer microparticles with tunable surface properties by the combination of suspension free radical copolymerization and click chemistry. *Journal of Colloid and Interface Science*, 607 :1687–1698, 2022.
- [61] Neil YC Lin, Christopher Ness, Michael E Cates, Jin Sun, and Itai Cohen. Tunable shear thickening in suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(39) :10774–10778, 2016.
- [62] C Garat, S Kiesgen de Richter, P Lidon, A Colin, and G Ovarlez. Using good vibrations : Melting and controlled shear jamming of dense granular suspensions. *Journal of Rheology*, 66(2) :237–256, 2022.
- [63] Laurent Lobry, Elisabeth Lemaire, Frédéric Blanc, Stany Gallier, and François Peters. Shear thinning in non-brownian suspensions explained by variable friction between particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 860 :682–710, 2019.
- [64] Muhammad Arshad, Abdelhamid Maali, Cyrille Claudet, Laurent Lobry, François Peters, and Elisabeth Lemaire. An experimental study on the role of inter-particle friction in the shear-thinning behavior of non-brownian suspensions. *Soft Matter*, 17(25) :6088–6097, 2021.
- [65] Rishabh V. More and Arezoo M. Ardekani. Effect of roughness on the rheology of concentrated non-brownian suspensions : A numerical study. *Journal of Rheology*, 64(1) :67–80, 2020.
- [66] James A Richards, Ben M Guy, Elena Blanco, Michiel Hermes, Guilhem Poy, and Wilson CK Poon. The role of friction in the yielding of adhesive non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 64(2) :405–412, 2020.
- [67] Duncan Gilbert, Rudy Valette, and Elisabeth Lemaire. Impact of particle stiffness on shear-thinning of non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 66(1) :161–176, 2022.
- [68] NJ Balmforth, JWM Bush, and RV Craster. Roll waves on flowing cornstarch suspensions. *Physics Letters A*, 338(6) :479–484, 2005.
- [69] Prabhu R Nott and John F Brady. Pressure-driven flow of suspensions : simulation and theory. *Journal of Fluid Mechanics*, 275 :157–199, 1994.
- [70] Michiel Hermes, Ben M Guy, Wilson CK Poon, Guilhem Poy, Michael E Cates, and Matthieu Wyart. Unsteady flow and particle migration in dense, non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 60(5) :905–916, 2016.
- [71] Rahul N Chacko, Romain Mari, Michael E Cates, and Suzanne M Fielding. Dynamic vorticity banding in discontinuously shear thickening suspensions. *Physical review letters*, 121(10) :108003, 2018.
- [72] Guillaume Ovarlez, Anh Vu Nguyen Le, Wilbert J. Smit, Abdoulaye Fall, Romain Mari, Guillaume Chatté, and Annie Colin. Density waves in shear-thickening suspensions. *Science Advances*, 6(16), 2020.

- [73] Anaïs Gauthier, Mickaël Pruvost, Olivier Gamache, and Annie Colin. A new pressure sensor array for normal stress measurement in complex fluids. *Journal of Rheology*, 65(4) :583–594, 2021.
- [74] James A Richards, John R Royer, Benno Liebchen, Ben M Guy, and Wilson CK Poon. Competing timescales lead to oscillations in shear-thickening suspensions. *Physical review letters*, 123(3) :038004, 2019.
- [75] Christopher J Koh, Philip Hookham, and L Gary Leal. An experimental investigation of concentrated suspension flows in a rectangular channel. *Journal of Fluid Mechanics*, 266 :1–32, 1994.
- [76] MM Cui and RJ Adrian. Refractive index matching and marking methods for highly concentrated solid–liquid flows. *Experiments in fluids*, 22(3) :261–264, 1997.
- [77] Mathieu Souzy, Henri Lhuissier, Emmanuel Villermaux, and Bloen Metzger. Stretching and mixing in sheared particulate suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 812 :611–635, 2017.
- [78] Peter A Santi, Shane B Johnson, Matthias Hillenbrand, Patrick Z GrandPre, Tiffany J Glass, and James R Leger. Thin-sheet laser imaging microscopy for optical sectioning of thick tissues. *Biotechniques*, 46(4) :287–294, 2009.
- [79] Jeffrey F Morris and Fabienne Boulay. Curvilinear flows of noncolloidal suspensions : The role of normal stresses. *Journal of rheology*, 43(5) :1213–1237, 1999.
- [80] Howard A Barnes, John Fletcher Hutton, and Kenneth Walters. *An introduction to rheology*, volume 3. Elsevier, 1989.
- [81] Christopher W Macosko. Rheology principles. *Measurements and Applications*, 1994.
- [82] Brice Saint-Michel, Sébastien Manneville, Steven Meeker, Guillaume Ovarlez, and Hugues Bodiguel. X-ray radiography of viscous resuspension. *Physics of Fluids*, 31(10) :103301, 2019.
- [83] Shirley C Tsai and Brian Viers. Effects of liquid polarity on rheology of noncolloidal suspensions. *Journal of Rheology*, 31(6) :483–494, 1987.
- [84] Shirley C Tsai and Kamel Zammouri. Role of interparticular van der waals force in rheology of concentrated suspensions. *Journal of Rheology*, 32(7) :737–750, 1988.
- [85] Nadine Joachimowicz, Christophe Conessa, Tommy Henriksson, and Bernard Duchêne. Breast phantoms for microwave imaging. *IEEE Antennas and Wireless Propagation Letters*, 13 :1333–1336, 2014.
- [86] Yunlong Yu, Bernard D Kieviet, Edit Kutnyanszky, G Julius Vancso, and Sissi de Beer. Cosolvency-induced switching of the adhesion between poly (methyl methacrylate) brushes. *ACS macro letters*, 4(1) :75–79, 2015.
- [87] Asimina Sierou and John F Brady. Rheology and microstructure in concentrated non-colloidal suspensions. *Journal of Rheology*, 46(5) :1031–1056, 2002.
- [88] Étienne Couturier, François Boyer, Olivier Pouliquen, and Élisabeth Guazzelli. Suspensions in a tilted trough : second normal stress difference. *Journal of Fluid Mechanics*, 686 :26–39, 2011.

- [89] Ryohei Seto and Giulio G Giusteri. Normal stress differences in dense suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 857 :200–215, 2018.
- [90] Stany Gallier, Elisabeth Lemaire, François Peters, and Laurent Lobry. Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 757 :514–549, 2014.
- [91] Abhinendra Singh, Romain Mari, Morton M Denn, and Jeffrey F Morris. A constitutive model for simple shear of dense frictional suspensions. *Journal of Rheology*, 62(2) :457–468, 2018.
- [92] Junhao Dong and Martin Trulsson. Analog of discontinuous shear thickening flows under confining pressure. *Physical Review Fluids*, 2(8) :081301, 2017.
- [93] Abdoulaye Fall, N Huang, François Bertrand, G Ovarlez, and Daniel Bonn. Shear thickening of cornstarch suspensions as a reentrant jamming transition. *Physical review letters*, 100(1) :018301, 2008.
- [94] Daria Szymanowska-Powalowska, Grażyna Lewandowicz, Wioletta Błaszczak, and Artur Szwengiel. Structural changes of corn starch during fuel ethanol production from corn flour. *BioTechnologia*, 2012.
- [95] Cécile Clavaud, Antoine Béruit, Bloen Metzger, and Yoël Forterre. Revealing the frictional transition in shear-thickening suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(20) :5147–5152, 2017.
- [96] Sebastian Chialvo, Jin Sun, and Sankaran Sundaresan. Bridging the rheology of granular flows in three regimes. *Physical review E*, 85(2) :021305, 2012.
- [97] Franco Tapia, Mie Ichihara, Olivier Pouliquen, and Élisabeth Guazzelli. Viscous-inertial transition in dense granular suspension. *arXiv preprint arXiv :2202.10641*, 2022.
- [98] Vikram Rathee, Daniel L Blair, and Jeffrey S Urbach. Localized stress fluctuations drive shear thickening in dense suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(33) :8740–8745, 2017.
- [99] Brice Saint-Michel, Thomas Gibaud, and Sébastien Manneville. Uncovering instabilities in the spatiotemporal dynamics of a shear-thickening cornstarch suspension. *Physical Review X*, 8(3) :031006, 2018.
- [100] James A Richards, John R Royer, Benno Liebchen, Ben M Guy, and Wilson CK Poon. Competing timescales lead to oscillations in shear-thickening suspensions. *Physical review letters*, 123(3) :038004, 2019.
- [101] Baptiste Darbois Texier, Henri Lhuissier, Yoël Forterre, and Bloen Metzger. Surface-wave instability without inertia in shear-thickening suspensions. *Communications Physics*, 3(1) :1–7, 2020.