

Viscoélasticité et écoulements de fluides structurés

Ghania Benbelkacem Benbelkacem-Benmouffok

▶ **To cite this version:**

Ghania Benbelkacem Benbelkacem-Benmouffok. Viscoélasticité et écoulements de fluides structurés. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009. Français. NNT : 2009INPL012N . tel-01748911

HAL Id: tel-01748911
https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748911

Submitted on 29 Mar 2018

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.

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Nancy-Université
INPL

Ecole Doctorale EMMA
Département de Mécanique et Energétique

Thèse

présentée pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
en Mécanique et Energétique

par

Ghania BENBELKACEM
(épouse BENMOUFFOK)

Viscoélasticité et écoulements de fluides structurés

Directeur de thèse : Salaheddine SKALI-LAMI
Soutenance publique le 06 Février 2009

Membres du Jury :

Président :	Michel LEBOUCHE	Professeur, Université Henri Poincaré Nancy1
Rapporteurs :	Albert MAGNIN	Directeur de Recherche, INPG Grenoble1
	Innocent MUTABAZI	Professeur, Université du Havre, Le Havre
Examinateurs :	Christophe BARAVIAN	Professeur, Université Henri Poincaré Nancy1
	David GUERIN	Docteur Ingénieur, CTP Grenoble
	François CATON	Chargé de Recherche, INPG Grenoble1
	Salaheddine SKALI-LAMI	Maître de Conférences, Université Henri Poincaré Nancy1

Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée - CNRS UMR 7563
Institut National Polytechnique de Lorraine - 54501 Vandœuvre-lès-Nancy

Remerciements

Ce mémoire est le fruit d'un peu plus de trois années de travail. Pendant cette période, j'ai collaboré avec plusieurs personnes. Ces lignes leurs sont consacrées.

Je pense en premier lieu à exprimer mes sincères remerciements à mes encadrants. Je remercie *François Caton* d'avoir encadré ma thèse et pour l'aide qu'il a pu apporter à travers ses conseils avisés et sa grande disponibilité. *François* a effectué un travail important en vue de la selection du projet ACI et l'obtention du financement de ma thèse. Je le remercie vivement pour la confiance qu'il m'avais accordé pour la réalisation de ce travail. Je remercie également *Salaheddine Skali-Lami* d'avoir encadré ma thèse, pour sa patience et réflexions toujours enrichissantes. Nos échanges durant ce travail de thèse ont été fructueux.

Je tiens à exprimer ma sincère reconnaissance à *Christophe Baravian* pour sa disponibilité, son apport scientifique et son enthousiasme débordant qui m'a motivé tout au long de ce travail. *Christophe* a suivi de près mon travail, nos nombreuses discussions m'ont permis de progresser. Je tiens à lui epxrimer toute ma gratitude et mon respect.

Je remercie monsieur Michel Lebouché d'avoir soutenu le projet ACI, ce qui a permis le financement et la réalisation de cette thèse. Je remercie mes rapporteurs *Albert Magnin* et *Innocent Mutabazi* ainsi que l'ensemble des membres du jury pour leur lecture attentive de mon manuscrit. Ils ont su manifester un grand intérêt à l'égard de mon travail.

Je tiens à exprimer ma gratitude à *Alain Delconte* et *J-Y. Morel* et au personnel de l'atelier de mécanique de l'ENSEM pour leurs conseils et leurs aides précieuses à la mise en place du dispositif expérimental. Je suis reconnaissante à Gérard Maurice et à Salem Isaad pour leur lécture attentive et leurs pertinentes corrections du mémoire.

J'exprime mes remerciements aux secrétaires, informaticiens et techniciens du LEMTA : *Ca-*

therine, Edith, Fatiha, Valérie, Anne-Marie, Ludovic, Jean-Pierre et *Daniel* pour leur constante disponibilité et courtoisie à mon égard. Je ne pourrais oublier mes collègues doctorant : *Jérome, Cyril, Cédryck, Yoann, Tony* et *Nadjim* qui ont été toujour prêt à m'aider ou à m'écouter. Je pense aussi à mes étudiants *A-M. Phylippe, E. Demongeon, B. Tessier* et *C. Hanotin* qui ont fait un très bon travail.

Je rend un hommage particulier à mon chèr mari *Moussa*, que je n'ai pas vu autant qu'il a fallu. Sa patience et sa tendresse mon réconforté durant ce long et difficile voyage qu'est la thèse. Je tiens à remercier mes parents, les parents de mon mari, mes frères et mes sœurs sans oublier mes amis pour leur soutien au quotidien.

Je dédie cette thèse à mon chèr père ALI.

Ghania

Résumé

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons aux différents comportements de fluides structurés (solutions aqueuses de polymères, suspensions), sous écoulements cisaillés. Dans la première partie, nous donnons une description globale des objets constituant le matériau en utilisant une modélisation structurelle, d'une part et en effectuant des mesures de biréfringence pour qualifier l'anisotropie des objets, d'autre part. A travers la loi tentio-optique, nous montrons que le comportement des objets ne dépend que de la contrainte appliquée. En outre, nous étudions les conditions de mesures objectives pour mener une caractérisation rigoureuse, en comparant des mesures de fluage et d'oscillations et en utilisant une approche analytique. Ce qui va permettre de développer une méthode d'identification des paramètres viscoélastiques et leurs évolutions sous cisaillement, dans le régime linéaire et non linéaire. La deuxième partie concerne les écoulements bidimensionnels de ces fluides dans une géométrie de cylindres coaxiaux centrés et excentrés, à grand entrefer. Le dispositif expérimental est validé par des mesures sur un fluide newtonien. L'objectif est d'étudier le comportement local de différents fluides en utilisant la technique de la PIV. Pour cela, nous réalisons un dispositif expérimental fiable et suffisamment précis pour accéder au champs de vitesse instantané dans tous l'entrefer. Les mesures nous permettent d'accéder à la loi de comportement locale de chaque matériau que nous comparons avec la loi de comportement « globale » donnée par le rhéomètre dans le cas de la géométrie centrée. De plus, des simulations numériques sur Fluent, ont été effectuées pour compléter notre étude. Les résultats obtenus pour des écoulements laminaires, de différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant, très rhéofluidifiant, montrent qu'il est possible de décrire et prédire le comportement des fluides newtoniens et faiblement rhéofluidifiants mais les modèles classiques existants dans Fluent ne sont pas capables de décrire le comportement des fluides très rhéofluidifiant qui présentent une très forte hétérogénéité des gradients de vitesse dans l'entrefer.

Mots clé : Viscoélasticité. Solutions de polymère. Description structurelle en rhéologie. Biréfringence du Xanthane. Rhéomètres à contrainte imposée. Effets d'inertie. Loi de comportement. Ecoulements entre deux cylindres.

Abstract

Under this thesis, we look at the different behaviors of structured fluids (aqueous solutions of polymers, suspensions) under sheared flow. In the first part, we give a comprehensive description of the items constituting the material using a structural modeling, on the one hand and carrying out birefringence measures to qualify anisotropy objects on the other. Through the tentio-law, we show that the behavior of objects depends only on the applied stress. In addition, we study the conditions of objective measures to conduct a rigorous characterization, comparing creep and oscillations measures, and using an analytical approach. This will help develop a method for identifying viscoelastic parameters and their developments under shear, in both a linear and a no linear regime. The second part concerns the two-dimensional flows of fluids in a coaxial cylinder geometry centered and eccentred, in a wide gap. The objective is to study the local behavior of different fluids using the PIV technic. To do this, we realize an experimental reliable and accurate enough, in all the gap. The experimental device is validated by measurements on a Newtonian fluid. The measures allow to access the local law behavior of each material that we compare with the overall behavior of law given by the rheometer in the case of centered geometry . In addition, digital simulations on Fluent, were made to complement our study. The results for laminar flow, for different fluids : newtonian, little rhéofluidifiant and very rhéofluidifiant, show that it is possible to describe and predict the behavior of some fluid but the existing model in Fluent can not describe the behavior of very rheofluidifiant fluids which have a very strong heterogeneity gradients speed in the gap.

Keywords : Viscoelasticity. Polymer solutions. Structural descriptions. Birefringence of Xanthane. Controled stress rheometer. Innertia effects. Behavior law. Flow between two cylinders.

Table des matières

Remerciements i
Résumé iii
Abstract v
Nomenclature xiii
Introduction 1

I Caractérisation Rhéologique **5**

1 Rhéologie des fluides Complexes **9**
1.1 Notions utiles en Rhéologie 11
1.1.1 Que sont les fluides complexes ? 11
1.1.2 Tenseur des contraintes en cisaillement simple 11
1.1.3 Modèles rhéologiques : Comportement stationnaire 13
1.1.4 Contrainte seuil 16
1.1.5 Anisotropie des contraintes normales 17
1.2 Techniques de mesures en rhéologie : Rhéométrie 18
1.2.1 Géométries de mesure 19
1.2.2 Phénomènes perturbateurs 21
1.3 Matériaux utilisés : les polymères 24
1.3.1 Emkarox ® 25
1.3.2 Carboxyméthylcellulose (CMC) 25
1.3.3 Xanthane 26
1.3.4 Polyacrylamide (modifié) 28
1.3.5 Carbopol 940 29
1.4 Caractéristiques rhéologiques : régime instationnaire 30
1.4.1 Nombre de Déborah 30
1.4.2 Thixotropie et cinétique de structure 31

1.4.3 Viscoélasticité 32
1.5 Conclusion 36

2 Rhéométrie stationnaire : Description structurelle 37
2.1 Polymère en solution aqueuse 39
2.2 Relation viscosité-fraction volumique : (modèle des sphères dures) 40
2.2.1 Un peu d'histoire 40
2.2.2 Nombres adimensionnels 42
2.2.3 Particule isolée 43
2.2.4 Milieux dilué, semi-dilués et concentrés 43
2.3 Relation viscosité-structure 45
2.4 Application aux solutions de polymères étudiées : CMC, Xanthane et Polyacrylamide 46
2.4.1 Hypothèses 46
2.4.2 Courbes d'écoulement 47
2.4.3 Résultats 48
2.4.4 Discussion 50
2.4.5 Vérification des résultats de la modélisation 55
2.4.6 Bilan 56
2.5 Mesure de biréfringence sur des solutions de Xanthane 57
2.5.1 Lumière polarisée 58
2.5.2 Notion de biréfringence 59
2.5.3 Mesure de Biréfringence 60
2.5.4 Evaluation de la biréfringence : loi tensio-optique 65
2.5.5 Bilan 66
2.6 Conclusion 67

3 Rhéométrie instationnaire : Méthodes de caractérisation. Fluage et Oscillations 69
3.1 Inertie 71
3.2 Approche analytique 72
3.2.1 Fluage 73
3.2.2 Oscillations forcées autour d'une contrainte nulle 74
3.3 Dispositif et méthodes expérimentales 74
3.3.1 Matériau utilisé 74
3.3.2 Appareil de mesure 75
3.3.3 Procédures 75

3.4 Résultats expérimentaux . . . 77
3.4.1 Fluage . . . 77
3.4.2 Oscillations . . . 78
3.5 Oscillations autour d'une contrainte non nulle 0.3Pa . . . 83
3.6 Conclusion . . . 84

4 Nonlinear viscoelasticity and temporal behavior of typical yield stress fluids : Carbopol, Xanthan and Ketchup 87

4.1 Introduction . . . 89
4.2 Theory . . . 90
4.2.1 Coupling between the instrumental inertia and the fluid's viscoelasticity . . 90
4.2.2 Locally Linear Viscoelastic Model. . . . 91
4.2.3 Equations of motion. . . . 92
4.2.4 Analytical solution for successions of creep experiments . . . 92
4.3 Experimental system and materials . . . 93
4.3.1 Materials . . . 93
4.3.2 Measurement techniques . . . 94
4.4 Rheological methods and procedures . . . 94
4.4.1 Procedure . . . 94
4.4.2 Determination of the materials properties . . . 96
4.5 Results and discussion . . . 98
4.5.1 Carbopol 0.3% . . . 98
4.5.2 Xanthan 2% . . . 101
4.5.3 Ketchup . . . 101
4.6 Conclusions . . . 104

II Ecoulements dans des géométries à cylindres centrés et éxcentrés 105

5 Bibliographie sur l'écoulement entre deux cylindres 109

5.1 Description du système de Couette . . . 111
5.2 Histoire de la géométrie de Couette et régimes d'écoulement de Couette-Taylor pour un fluide newtonien . . . 112
5.2.1 Critère de Rayleigh . . . 113
5.2.2 Influence du rapport d'aspect . . . 114
5.2.3 Equation de l'écoulement de base . . . 114

5.3 Régimes d'écoulement de Couette-Taylor pour un fluide viscoélastique 115
5.3.1 Caractéristiques de l'écoulement 115
5.3.2 Instabilité inertielle 116
5.3.3 Instabilité inertio-élastique 117
5.3.4 Instabilité élastique 118
5.4 Écoulements entre deux cylindres excentrés 118
5.4.1 Fluides newtoniens 119
5.4.2 Fluides viscoélastiques 121
5.5 Situation présente du problème (notre étude) 123

6 Dispositif expérimental et méthodes 125
6.1 Technique de mesure 127
6.1.1 Principe de base de la PIV (2D) 127
6.1.2 La corrélation croisée appliquée à la FFT 129
6.1.3 Paramètres affectant le rapport : Signal/Bruit 130
6.1.4 Résolution du champ de vitesses 130
6.2 Description du dispositif expérimental 131
6.2.1 Géométrie, Rhéomètre et Platine de translation 132
6.2.2 Positionnement de la caméra par rapport à la nappe laser 135
6.3 Procédure de mesure 136
6.4 Validation du dispositif expérimental 136
6.4.1 Théorie et hypothèses 137
6.4.2 Comparaison pour différents rayons R de l'entrefer 138
6.4.3 Comparaison pour différentes vitesses Ω du cylindre intérieur 138
6.4.4 Lignes de courant 141
6.5 Conclusion 141

7 Ecoulements dans des géométries à cylindres centrés et excentrés 143
7.1 Rhéologie des fluides utilisés 145
7.1.1 Procédure 145
7.1.2 Courbes d'écoulement 145
7.2 Ecoulements bidimensionnels dans une géométrie à cylindres coaxiaux 147
7.2.1 Résultats 147
7.2.2 Comparaisons et discussions 150
7.2.3 Loi de comportement locale 152

7.2.4 Bilan 156
7.3 Ecoulements bidimensionnels dans une géométrie à cylindres excentrés 158
7.3.1 Fluide newtonien : Emkarox® 158
7.3.2 Observation au cours du temps de l'écoulement dans la géométrie à forte excentricité $\delta = d/R_i = 0.75$ 162
7.3.3 Fluide faiblement rhéofluidifiant : CMC 3% 164
7.3.4 Xanthane 0.5% 167
7.4 Conclusion 170

Conclusion et Perspectives **171**

Annexes **177**

A Etalonnage du vane moyen **177**
A.1 Problématique 177
A.2 Mesures avec des fluides newtoniens : 177
A.2.1 Mesure du frottement du palier à air 178
A.2.2 Mesure des paramètres géométriques (Facteurs géométriques) 178
A.3 Mesures avec le Carbopol 0.1% : vérification des paramètres 180

B Résultats de la caractérisation viscoélastique **183**

C Simulations numériques sur Fluent **187**
C.1 Technique de résolution 187
C.2 Procédure de résolution et maillage 188
C.3 Simulation numérique d'un écoulement newtonien dans une géométrie de Couette . . 189

Bibliographie **200**

Nomenclature

Lettres latines :

t	Temps
N_1	Première différence de contraintes normales
N_2	Deuxième différence de contraintes normales
I	Moment d'inertie
G	Module élastique
t_E	Temps d'observation de l'expérience
t_C	Temps caractéristique du matériau
c	concentraction massique
c^*	Première concentraction critique
c^{**}	Deuxièmes concentraction critique
a	rayon de particule
N	Densité numérique
T	Température
U	Énergie d'interaction
W_H	Énergie hydrodynamique
D_0	Coefficient de diffusion brawnienne
R_i	Rayon du cylindre intérieur
R_e	Rayon du cylindre extérieur
e	Entrefer moyen
d	distance entre les deux axes des cylindres
L	Longeur des cylindre

Nombres adimensionnels :

$\Re_e$	Nombre de Reynolds
Pe	Nombre de peclet
De	Nombre de Deborah
k_B	Constante de Boldzmann

Lettres grecques :

σ	Contrainte de cisaillement
σ_c	Contrainte caractéristique
$\dot{\gamma}$	Vitesse de cisaillement
γ	Déformation
η	Viscosité
η_0	Viscosité à faibles contraintes de cisaillement
η_∞	Viscosité à fortes contraintes de cisaillement
η_f	Viscosité du fluide suspendant
ρ	Masse volumique
$1/\lambda$	Temps caractéristique viscoélastique
F_σ	Facteur géométrique de contrainte
$F_{\dot{\gamma}}$	Facteur géométrique de vitesse de cisaillement
Γ	Couple
α	Paramètre d'inertie
d_θ	Déplacement angulaire
Ω	Vitesse de rotation
ϕ	Fraction volumique
ϕ_{eff}	Fraction volumique effective
ϕ^*	Fraction volumique du paking aléatoire
ω	Pulsation propre
ω_0	Pulsation appliquée
ϵ	Courbure
δ	Excentricité
Γ_p	Rapport d'aspect

Introduction

La Rhéologie a pour objet d'étudier la réponse des matériaux sous écoulement. Elle permet en particulier de décrire le comportement linéaire ou non linéaire des matériaux dits viscoélastiques dont le comportement relève à la fois d'un solide (seuil d'écoulement, élasticité) et d'un fluide visqueux (viscosité, thixotropie). Les travaux exposés dans cette thèse s'inscrivent en grande partie dans le cadre de la caractérisation rhéologique des fluides complexes dit « structurés » dont la structure peut être modifiée par un cisaillement. Ces caractéristiques, qui permettent d'allier des comportements à priori opposés, constituent des matériaux extrêmement utilisés dans l'industrie, qu'elle soit pétrolière, agro-alimentaire, BTP, cosmétique ou pharmaceutique. A titre d'exemple, un produit alimentaire demande un seuil d'écoulement élevé pour garantir sa stabilité dans le temps (phase de stockage), mais également une rhéologie contrôlée pour que sa texture corresponde aux attentes des consommateurs (phase d'utilisation), et enfin une viscosité à forts cisaillements très petite pour favoriser les opérations de fabrication, de mélange, de stérilisation ou de transport en conduite (phase de procédé). La modélisation et la prédiction de ces différents écoulements en vue de leur optimisation dans un procédé est un défi industriel et scientifique de taille.

Le comportement macroscopique à grande échelle de ces fluides complexes, comme les solutions aqueuses de polymères ou les suspensions, sont à relier à la structure et aux réarrangements internes du matériau. En effet, ces matériaux peuvent être composés de particules ou d'entités en interactions. Ces objets forment donc des structures hydrodynamiques dont la taille et les propriétés varient en fonction du temps, de leur concentration, de la contrainte mécanique qui leur est appliquée et de la nature des interactions mis en jeux.

Les travaux exposés dans cette thèse font partie de la thématique traditionnelle du LEMTA qui est *la dynamique des fluides complexes* dont une des préoccupations majeures est la comparaison des mesures expérimentales et de prédictions numériques dans des configurations académiques (expansions/contraction, cylindres coaxiaux,...), qui permettent de guider la modélisation des écoulements de matériaux aussi variés que les émulsions, les gels faibles de polymères, les suspensions d'argiles,... et l'influence des lois rhéologiques sur ces écoulements. Cette thématique a été

confortée par le financement du projet ACI « Jeunes chercheuses et jeunes chercheurs » porté par F. CATON et intitulé : « *Ecoulements de fluides structurés : expérience, modélisation et simulation numériques* » (2004 – 2007). Au centre d'inertie de ce projet se trouve :

- Le développement d'un code de simulations numériques utilisant des lois de comportement réalistes pour l'écoulement de matériaux dont nous aurons caractérisé la rhéologie. Ces travaux sont réalisés dans le cadre de la thèse de Y. Cheny (directeurs de thèse : O. Botella et M. Lebouché), au LEMTA.
- **La caractérisation rhéologique et l'étude expérimentale des écoulements de différents fluides permettant la construction d'une base exhaustive de données qui fournit, à la fois, les paramètres nécessaires au code et également permet de valider les prédictions numériques. Ces travaux sont réalisés dans le cadre de cette thèse (directeurs de thèse : F. Caton et S. Skali-Lami), au LEMTA. C'est ce que nous vous présentons dans ce mémoire.**

Le mémoire de thèse est organisé en deux parties. La première partie traite de la méthode et de la caractérisation rhéométriques proprement dite de plusieurs types de fluides, sur un rhéomètre contrôlé en contrainte. L'objectif de cette première partie est d'apporter une description rhéologique la plus complète possible du comportement en cisaillement simple de ces fluides. Ces travaux ont permis de contribuer à une description approchée de certaines solutions de polymères, et donc d'apporter une interprétation structurale au comportement de certains de ces fluides.

Cette partie se compose de quatre chapitres :

- Chapitre 1 : Il s'agit du chapitre introductif aux notions abordées dans notre étude. Il comporte une analyse bibliographique sur les techniques expérimentales, les matériaux utilisés, et les précautions nécessaires relatives aux mesures rhéométriques afin de mener une caractérisation rigoureuse soit en régime stationnaire ou en régime instationnaire.
- Chapitre 2 : dans ce chapitre, nous appliquons le modèle structural de Quemada à trois solutions de polymères, permettant d'apporter une interprétation structurelle a leur comportement rhéométrique. Pour le Xanthane cette étude est complétée par des mesures de biréfringence.
- Chapitre 3 : dans ce chapitre, nous comparons une méthode de caractérisation rhéométrique récente utilisant les oscillations inertio-élastiques et les oscillation forcées (paramètres donnés par le rhéomètre et paramètres déduits de notre approche analytique). Cette comparaison a pour objectif de valider cette méthode. Ce chapitre a fait l'objet d'une publication dans *Rheologica Acta*.

– Chapitre 4 : dans ce chapitre, nous avons utilisé la méthode validée dans le chapitre précédent pour déterminer les paramètres viscoélastiques non linéaires de différents fluides à seuil. Ce chapitre a fait l'objet d'une publication dans *Rheologica Acta* (soumission).

La deuxième partie de cette thèse concerne les écoulements bidimensionnels des fluides dans une géométrie de cylindres coaxiaux centrés et excentrés, à grand entrefer. L'objectif de cette partie est d'étudier le comportement local de différents fluides en utilisant la technique de la PIV (Particle Image Velocimetry). Pour cela, il a fallu réaliser un dispositif expérimental fiable et suffisamment précis pour accéder aux champs de vitesses instantanés dans tout l'entrefer. Les mesures nous ont permis d'accéder à la loi de comportement locale de chaque matériau, que l'on compare avec la loi de comportement déterminée en rhéométrie standard. Enfin des simulations numériques sur Fluent, ont été effectuées pour compléter notre étude, afin de tester les capacités prédictives de ce code numérique commercial, pour des lois de comportements linéaires et non linéaires. Cette partie comporte trois chapitres :

– Chapitre 5 : dans ce chapitre, nous résumons les travaux existants en géométrie de Couette à large entrefer en fluides non newtoniens ainsi que ceux effectués dans la géométrie à cylindres excentrés.
– Chapitre 6 : dans ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental réalisé durant ma thèse ainsi que la technique de mesure utilisée (PIV). Nous validons le dispositif expérimental sur la géométrie centrée, par de multiples mesures en un fluide newtonien.
– Chapitre 7 : nous présentons dans ce chapitre, les résultats obtenus pour des écoulements laminaires, de différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant, très rhéofluidifiant. Nous confrontons les lois rhéologiques locales déterminées par les champs de vitesses aux mesures rhéologiques habituelles. Nous comparons également ces résultats aux simulations numériques, en utilisant des modèles optimum issus des données rhéométriques. Enfin, nous discutons la possibilité (ou non) de prédire les écoulements de certains fluides complexes.

Nous terminons par une conclusion générale et nous évoquons quelques perspectives possibles à ce travail.

Première partie

Caractérisation Rhéologique

Cette première partie de mon travail de thèse est consacrée, tout d'abord, à rappeler les différentes notions et techniques utilisées en rhéologie.

Dans un second temps nous appliquerons la description structurelle developpée par D. Quemada à différentes solutions aqueuses de polymère en mauvais solvant, bien que cette description ait été développée pour des suspensions colloidales.

Puis, nous étudierons en détail une méthode récente de caractérisation de la viscoélasticité non linéaire des fluides complexes. Cette méthode, utilisant les oscillations inertio-elastiques, est comparée aux mesures oscillantes habituelles. Enfin, nous appliquerons cette méthode pour obtenir les propriétés viscoélastiques non linéaires de plusieurs fluides à seuil, y compris dans le régime fortement non linéaire (au dela du seuil d'écoulement). Nous nous intéresserons en particulier à l'élasticité des fluides à seuil au dela du seuil, et à leur comportement temporel (thixotropie, viscoélasticité retardée ou inhomogénéités).

"La science ne cherche pas à énoncer des vérités éternelles ou de dogmes immuables ; loin de prétendre que chaque étape est définitive et qu'elle a dit son dernier mot, elle cherche à cerner la vérité par approximations successives."

Bertrand Russell

Chapitre 1

Rhéologie des fluides Complexes

La déformation et l'écoulement de la matière sont des phénomènes nécessairement présents dans l'industrie et interviennent, par exemple, quand on s'intéresse au comportement de la pâte à pain sous une contrainte, ou l'écoulement du miel sous l'effet de la pesanteur. L'étude de ces phénomènes nécessite d'analyser, au sein de ces matériaux, la relation entre la contrainte et le taux de cisaillement si on veut comprendre et prédire leur comportement principalement sous cisaillement. E.C. Bingham a attribué le nom de **Rhéologie** à cette discipline, lorsque la société américaine de rhéologie fut reconnue en 1929. Historiquement, la rhéologie a vu sont développement d'une part, à partir de la théorie de l'élasticité, d'autre part de la mécanique des fluides. En particulier le développement de la **viscoélasticité** qui permet de décrire des matériaux dont le comportement se situe entre un solide élastique parfait et un fluide visqueux.

Ce chapitre a pour but de rappeler les principes de base en rhéologie, ainsi que les matériaux, les outils et les méthodes de mesure utilisées dans notre travail de thèse.

Sommaire

1.1 Notions utiles en Rhéologie 11

1.2 Techniques de mesures en rhéologie : Rhéométrie 18

1.3 Matériaux utilisés : les polymères 24

1.4 Caractéristiques rhéologiques : régime instationnaire 30

1.5 Conclusion 36

1.1 Notions utiles en Rhéologie

1.1.1 Que sont les fluides complexes ?

La relation entre la contrainte et le taux de cisaillement d'un matériau peut être linéaire (fluide newtonien) ce qui peut décrire, dans certaines conditions, des fluides composés de molécules simples comme l'eau ou certaines huiles. Pour d'autres matériaux cette relation peut être non-linéaire et/ou dépendantes du temps (fluides non-newtoniens ou complexes) ce qui décrit le comportement, sous écoulement, d'un grand nombre de matériaux courants comme les dispersions de particules ou les polymères en solution. La description de ces comportements, leur modélisation et leur interprétation en relation avec leur structure microscopique (ou mésoscopiques) constitue la *rhéologie des fluides complexes* ou *fluides structurés*. Cette dernière a connu un développement considérable avec l'apparition de nouvelles substances dans les domaines des polymères synthétiques, des émulsions ou encore des suspensions. En effet, il est apparu nécessaire de décrire et d'expliquer les propriétés de ces matériaux compte tenu de leur essor dans les industries agro-alimentaire, cosmétique, pharmaceutique ainsi que dans le BTP.

1.1.2 Tenseur des contraintes en cisaillement simple

Dans le cadre de la mécanique des milieux continus, la représentation des contraintes et des déformations est nécessairement sous forme tensorielle. Une *lois de comportement* est donc une relation tensorielle entre contrainte et déformation. Le tenseur de contrainte $\overline{\overline{\sigma}}$ peut se décomposer en deux termes :

- *i)* La pression hydrostatique p ;
- *ii)* Le déviateur des contraintes $\overline{\overline{T}}$ qui se rapporte aux contraintes tendant à déformer le fluide.

$$\overline{\overline{\sigma}} = -p.\overline{\overline{I}} + \overline{\overline{T}}$$

où p est la pression et $\overline{\overline{I}}$ est le tenseur identité.

Au cours d'un écoulement, les éléments fluides peuvent se déplacer les uns par rapport aux autres, ce qui conduit à l'obtention de vitesses différentes d'un point à un autre. Le tenseur des gradients de vitesses $\overline{\overline{\nabla}}u$ est par conséquent non nul. Les termes de la diagonale de $\overline{\overline{\sigma}}$ caractérisent des efforts en traction ou en compression, alors que les autres caractérisent des efforts associés au cisaillement.

La loi de comportement, en général, relie le déviateur des contraintes $\overline{\overline{T}}$ au tenseur des taux de déformation $\overline{\overline{D}}$ défini comme la partie symétrique du tenseur des gradients de vitesses :

$$\overline{\overline{D}} = 1/2\left(\overline{\overline{\nabla}}u + \left(\overline{\overline{\nabla}}u\right)^T\right)$$

où $\overline{\overline{\nabla}}u$ désigne le gradient de vitesse.

La loi de comportement la plus simple est celle obtenue pour un fluide newtonien qui est une relation biunivoque entre la contrainte et le taux de cisaillement :

$$\overline{\overline{T}} = -2\eta\overline{\overline{D}}$$

où η est la *viscosité dynamique* du fluide.

En général, la forme tensorielle de la loi de comportement est trop compliquée pour qu'elle puisse être caractérisée expérimentalement. L'objectif de la rhéométrie est de réaliser des écoulements simples permettant d'extraire une forme des tenseurs plus simple, valable pour ces types d'écoulements. Le cas de cisaillement le plus simple est celui du cisaillement entre deux plans parallèles l'un fixe et l'autre en translation suivant l'axe Ox animé d'une vitesse $\vec{u_0}$. Si l'écoulement est laminaire, on peut imaginer une structure du fluide sous forme de couches infiniment minces (voire figure Fig.1.1), la déformation du matériau s'effectuant par glissement relatif des couches les unes par rapport aux autres, sans transport de matière d'une couche à l'autre. Il en résulte des forces de frottement appelées *forces de cisaillement* qui s'exercent tangentiellement à la surface de chaque couche. On obtient la simplification suivante dans le cas du cisaillement simple :

$$\overline{\overline{\sigma}} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & 0 \\ \sigma_{xy} & \sigma_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -p & T_{xy} & 0 \\ T_{xy} & -p & 0 \\ 0 & 0 & -p \end{pmatrix}$$

et

$$\overline{\overline{\mathbf{D}}} = \frac{\dot{\gamma}}{2}\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

où $\dot{\gamma}$ représente le *taux de cisaillement* ou le *gradient de vitesse*, et σ_{xy} la contrainte de cisaillement.

Il est d'usage de rapporter les forces de cisaillement à l'unité de surface sur laquelle elles s'exercent ; on définit ainsi la *contrainte tangentielle de cisaillement*. En rhéométrie elle est généralement notée $\sigma = \sigma_{xy}$ (ou $\sigma = T = T_{xy}$) qui est une grandeur dynamique fondamentale de la rhéologie. D'autre part, la couche de matériau immédiatement en contact avec le plan fixe a une vitesse nulle ($u(y = 0) = 0$), et la couche en contact avec le plan mobile a une vitesse u_0, c'est la condition d'adhérence à la parois ($u(y = e) = u_0$). Entre les deux, la vitesses des couches augmente avec la distance au plan fixe.

Considérons un élément de volume infinitésimal situé à l'instant $t = 0$ à une distance y du plan fixe. A un instant t ultérieur, ce volume aura parcouru une distance $d(x, t)$. On définit le taux de

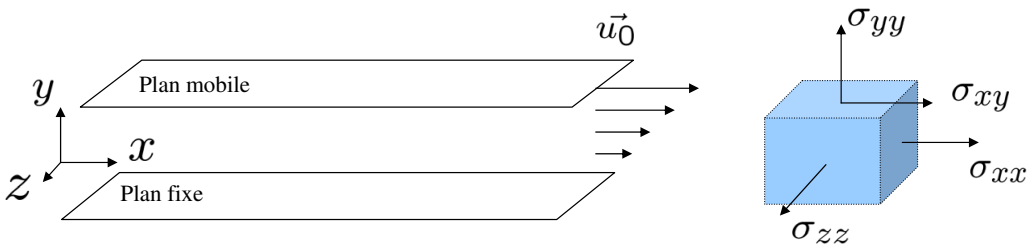


FIG. 1.1: *Cisaillement simple entre deux plan parallèles*

cisaillement $\dot{\gamma}$ par :

$$\dot{\gamma} = \frac{\partial}{\partial y}\left(\frac{\partial d(y,t)}{\partial t}\right) = \frac{\partial u(y,t)}{\partial y}$$

Dans ce cas du cisaillement simple, la viscosité dynamique du fluide est une grandeur caractéristique du matériau. Elle est donnée par :

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

Dans le cas des fluides non-newtoniens, la viscosité dépend entre autres du cisaillement $\eta(\dot{\gamma})$. En effet, pour les fluides complexes, comme les polymères en solution, elle peut avoir différents comportements suivant la nature ou la concentration du polymère dans le solvant. Quemada [1] a illustré schématiquement le comportement rhéologique observé pour une large variété de dispersions concentrées, lorsque la fraction volumique ϕ des particules varie (voire figure Fig.1.2).

La courbe décrivant la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement montre quatre types de comportement rhéologiques : lorsque la fraction volumique augmente, on passe successivement du comportement newtonien au comportement d'abord pseudo-plastique puis dilatant avec, à faibles cisaillements, un comportement plastique qui devient de plus en plus important [1]. Dans notre travail de thèse nous nous intéresserons au comportement pseudo-plastique (rhéofluidifiant) et plastiques.

1.1.3 Modèles rhéologiques : Comportement stationnaire

De nombreux modèles empiriques, reliant la contrainte de cisaillement σ au gradient de cisaillement $\dot{\gamma}$, ont été développés afin de décrire les comportement rhéologiques les plus couramment rencontrés. Le cas le plus simple correspond à celui du fluide newtonien :

$$\sigma = \eta\dot{\gamma} \tag{1.1}$$

viennent ensuite les fluides dont les propriétés ne dépendent pas du temps et dont la relation $\sigma = f(\dot{\gamma})$ peut s'écrire en loi de puissance. Cette loi permet de décrire la rhéofluidifiation ou le rhéoépaississement d'un grand nombre de fluides. Un des caractères non-newtoniens le plus répondu

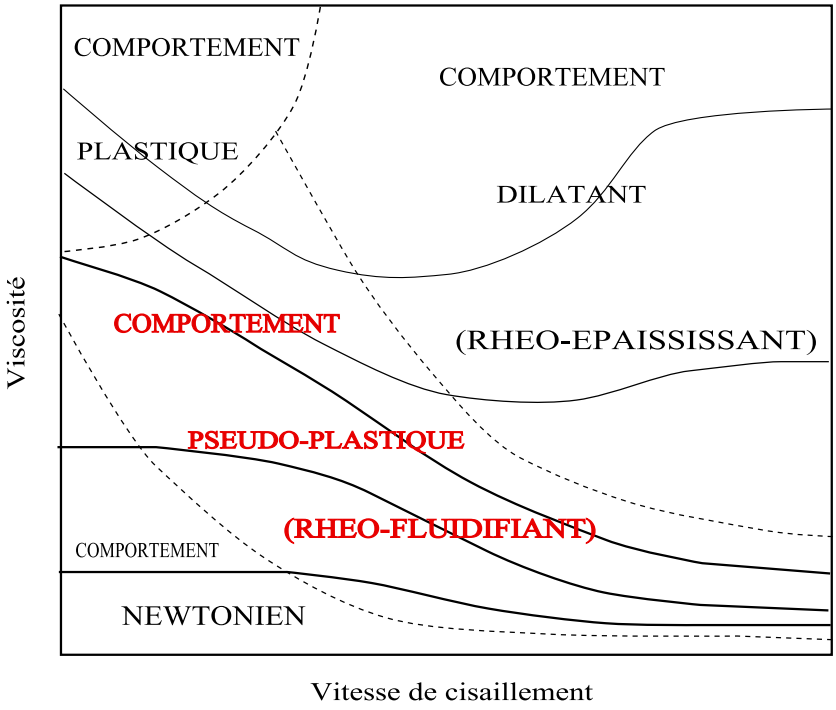


FIG. 1.2: *Différents types de comportement rhéologiques réels [1]*

est la variation de la viscosité avec la vitesse de cisaillement. Très souvent pour les solutions de polymères, la viscosité diminue au fur et a mesure que l'on augmente le taux de cisaillement auquel est soumis le fluide. Il s'agit du comportement rhéofluidifiant, que l'on peut observer aussi dans les suspensions de particules solides ou dans les suspensions de vésicules déformables comme le sang. Un fluide est rhéofluidifiant lorsque sa viscosité apparente diminue avec le taux de cisaillement. Cela peut être dû par exemple à un alignement de particules anisotropes dans le sens de l'écoulement ou à une destructuration. Un fluide rhéoépaississant, quant à lui, voit sa viscosité apparente augmenter avec le cisaillement. D'un point de vue phénoménologique, on décrit ce type de comportement en utilisant une loi de puissance, proposée par Ostwald-de Waele (1925), elle a pour expression :

$$\sigma = k\dot{\gamma}^n \tag{1.2}$$

La viscosité s'écrit alors : $\eta = k\dot{\gamma}^{n-1}$, où k est une constante et n est un exposant qui traduit l'écart au comportement newtonien pour lequel $n = 1$, un fluide rhéofluidifiant est représenté par $n \prec 1$ et un fluide rhéoépaississant par $n \succ 1$. Bien que ce modèle permette de résoudre bon nombres de problèmes d'écoulement de fluides non-newtoniens, il faut garder à l'esprit qu'il décrit mal le comportement à très faibles ou à très forts taux de cisaillement et que les paramètres k et n n'ont pas d'interprétation physique claire.

En réalité un fluide rhéofluidifiant ne l'est que pour une certaine gamme de taux de cisaillement comme on peut le voir sur la figure Fig.1.2. Pour les faibles cisaillements, on observe un comporte-

ment newtonien, avec un éventuel plateau de viscosité η_0 appelée viscosité à cisaillement nul. Pour des cisaillements élevés, on observe aussi un plateau de viscosité η_∞ appelée viscosité à cisaillement infini.

Il existe d'autres modèles plus sophistiqués que la loi de puissance pour décrire le comportement de la viscosité en fonction du cisaillement [2] [3], pour prendre en compte ces plateaux newtoniens de viscosité à cisaillements nul et infini. Par exemple, le modèle de Carreau-Yassuda, de Cross ou d'Ellis tiennent compte des plateaux de la viscosité à cisaillements nul et infini [4] :

– Modèle de Carreau-Yassuda :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \left(1 + (\lambda_1 \dot{\gamma})^b\right)^{(n-1)/b} \tag{1.3}$$

– Modèle de Cross :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + (\lambda_1 \dot{\gamma})^n} \tag{1.4}$$

– Modèle d'Ellis :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + (\lambda_2 \sigma)^n} \tag{1.5}$$

où a, λ_2 et n sont des constantes, λ_1 est un temps caractéristique de relaxation, σ est la contrainte, η_0 et η_∞ sont respectivement la viscosité à cisaillement nul et infini.

Le modèle d'Oswald-de Waele, de Carreau-Yassuda, de Cross ou encore d'Ellis présentent des comportements sans contraintes seuil. Dans le cas des *fluides à seuil*, un paramètre supplémentaire apparaît dans les modèles, c'est la contrainte seuil σ_y. Si la contrainte appliquée reste inférieure à cette valeur et pour une échelle de temps donnée, le matériau se comporte comme un solide ($\dot{\gamma} = 0$). Dans le cas où la contrainte appliquée est supérieure à cette valeur, le matériau se comporte comme un fluide. Les trois modèles les plus utilisés pour caractériser les fluides à seuil sont : le modèle de Bingham (1922), le modèle d'Herschel-Bulkley (1926) qui généralise le modèle de Bingham, et le modèle de Casson (1959) [5] :

– le modèle de Bingham :

$$\sigma = \sigma_y + \eta_{pl}.\dot{\gamma} \tag{1.6}$$

où η_{pl} est la viscosité plastique.

– le modèle d'Herschel-Bulkley :

$$\sigma = \sigma_y + k.\dot{\gamma}^n \tag{1.7}$$

où k est la consistance du fluide et n l'indice d'écoulement.

– le modèle de Casson :

$$\sqrt{\sigma} = \sqrt{\sigma_y} + \sqrt{\eta_{pl}.\dot{\gamma}} \tag{1.8}$$

Ces modèles permettent de représenter le comportement rhéologique de ces fluides au delà de la contrainte seuil. Ils ont été appliqués pour prendre en compte les propriétés rhéologiques de matériaux très variés comme les peintures, les boues, la pâte dentifrice, la mayonnaise, le chocolat fondu ou des crèmes de toutes sortes [6] [2] [7]. Ces matériaux appartiennent à la famille des suspension de particules ou émulsions concentrées.

Notons qu'il existe dans la littérature plusieurs autres modèles avec différents paramètres comme celui de Quemada [8] [1] [9], qui a l'avantage d'avoir un sens plus physique que les précédents. Ce modèle a été développé en se basant sur des considérations théoriques sur les suspensions de particules dans un fluide newtonien. Il a été élaboré en appliquant le principe de minimum d'énergie dissipée par la viscosité, valable pour les fluides ordinaires utilisant le concept d'unités structurelles [8] [10]. Il permet de décrire le comportement rhéologique des suspensions concentrées. Nous y reviendrons dans le chapitre 2. Il est donné par l'expression suivante :

$$\eta = \eta_\infty \left(\frac{1 + \left(\frac{\sigma}{\sigma_c}\right)^p}{\chi + \left(\frac{\sigma}{\sigma_c}\right)^p} \right)^2 \tag{1.9}$$

où σ est la contrainte appliquée, σ_c, p et χ sont les paramètres du modèle. $\chi = \left(\frac{\eta_\infty}{\eta_0}\right)^{1/2}$ où η_0 est la viscosité à faibles cisaillement. η_∞ est la viscosité à taux de cisaillement infini.

D'autres modèles avec différents paramètres (phénoménologiques ou d'ajustement) [11] [12] [13] ont été développés dans le but de décrire au mieux les différentes variétés de fluides complexes existant.

1.1.4 Contrainte seuil

La contrainte seuil est une notion liée explicitement à l'organisation microstructurelle du matériau. En effet, les fluides complexes sont généralement considérés comme des dispersions (ou suspensions) de microstructures qui constituent le fluide effectif, d'où leur nom de *fluides structurés*. Lorsque la dispersion est concentrée, un réseau d'interactions fortes peut alors exister à travers l'ensemble de la suspension. Pour provoquer l'écoulement de la suspension, il faut briser ce réseau : il y a existence d'un seuil d'écoulement. Pour certains auteurs, le seuil d'écoulement est controversé [2, 7], même si cette notion est toujours utilisée et reste un élément de base pour les raisonnements concernant les matériaux dit « à seuil ».

Lorsqu'on parle de contrainte seuil, on évoque une échelle de temps pour laquelle la contrainte appliquée réussit enfin à casser la structure. En l'occurrence, si le matériau en question soumis à une contrainte donnée ne coule pas au bout de quelques seconde, il peut couler au bout de quelques minutes, comme l'a montré Caton [14]. Par conséquent, il est important de préciser les échelles de

temps considérées pour les différentes expériences effectuées.

De plus, la détermination du seuil de manière objective est difficile puisqu'elle dépend du choix de l'appareil de mesure, précisément de la limite inférieure des cisaillements (ou du couple) que peut appliquer l'appareillage utilisé pour la mesure (Fig.1.3). Notons aussi que la contrainte seuil σ_y peut fortement varier d'un système à un autre. Si elle est généralement de quelques dizaines de Pascal, pour les fluides alimentaires comme la mayonnaise ou le ketchup, elle peut en revanche, être beaucoup plus élevée dans les suspensions très concentrées de particules solides. C'est le cas, par exemple, de l'argile naturelle où la contrainte seuil peut atteindre 10^5 Pa [5]. Une étude polémique de cette propriété a fait l'objet des travaux de Barnes [2].

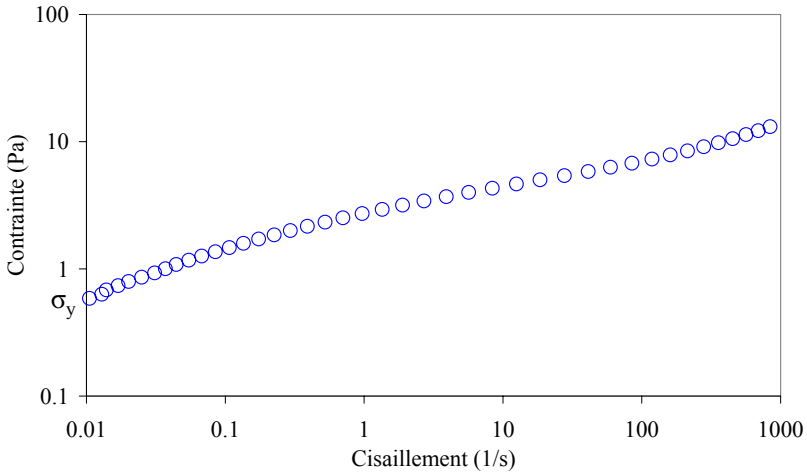


FIG. 1.3: *Exemple de courbe d'écoulement obtenue pour une solution de polymère de contrainte seuil σ_y*

De manière générale, on peut décrire la contrainte seuil comme étant la contrainte en dessous de laquelle, le matériau se comporte comme un solide élastique, et au dessus de laquelle le fluide coule et se comporte comme un fluide visqueux. En général, on représente les courbes d'écoulement sur des graphes logarithmiques (Fig.1.3). La contrainte correspondante au plus faible cisaillement mesuré est considérée comme étant la contrainte seuil du matériau σ_y.

1.1.5 Anisotropie des contraintes normales

Dans le cas d'un fluide homogène, isotrope et newtonien, le tenseur des contraintes voit la seule contrainte σ_{xy} modifiée par l'écoulement, les contrainte normales σ_{xx}, σ_{yy} et σ_{zz} restent isotropes et sont égales à $-p$. Dans certains matériaux non-newtoniens, essentiellement des solutions viscoélastiques de polymères de très grande masse moléculaire, l'écoulement de cisaillement induit également une anisotropie de contraintes normales d'où la définition de la première et de la seconde différence de contraintes normales :

$$\sigma_{xx} - \sigma_{yy} = N_1(\dot{\gamma})$$

et

$$\sigma_{yy} - \sigma_{zz} = N_2(\dot{\gamma})$$

A faibles taux de cisaillement, N_1 et N_2 sont des fonctions quadratiques de $\dot{\gamma}$, ils sont aussi exprimés en fonction des coefficients d'anisotropie ψ_1 et ψ_2 :

$$N_1 = -\psi_1.\dot{\gamma}^2$$

et

$$N_2 = -\psi_2.\dot{\gamma}^2$$

L'apparition d'anisotropie des contraintes normales est un effet non-linéaire lié au fait que l'écoulement de cisaillement modifie la microstructure du fluide et la rend anisotrope. On peut observer ce phénomène dans certaines solutions de polymères par exemple : la macromolécule en solution a l'aspect d'une pelote de fil (une forme globalement sphérique). Lorsqu'elle est soumise à un cisaillement suffisamment fort, cette pelote se déforme en une particule anisotrope dont le grand axe a tendance à tourner vers la direction de l'écoulement. L'élasticité du polymère, d'origine essentiellement entropique, a tendance à ramener cette particule à sa forme initiale (sphérique). La force de rappel est maximale dans la direction de l'écoulement, elle est responsable de l'apparition d'une compression le long de l'écoulement ($\sigma_{xx} \prec \sigma_{yy}$ donc N_1). Dans l'écoulement engendré par un cylindre tournant où la vitesse est azimutale, avec un gradient radial, l'anisotropie des contraintes normales conduit dans ce cas à $\sigma_{\theta\theta} \prec \sigma_{rr}$. Il y a une « tension »le long des lignes de courant circulaires qui tend à pousser le fluide vers le centre de rotation et donc à le faire monter le long du cylindre tournant, il s'agit de l'effet *Weissenberg* [3]. On peut aussi observer l'effet des contraintes normales dans le gonflement du jet sortant de l'orifice d'un tube de petit diamètre. Ce gonflement est dû à la relaxation des contraintes normale σ_{xx} (x étant la direction de l'axe du tube) accumulée pendant l'écoulement à l'intérieur du tube. En d'autres termes, dans le tube les parois équilibrent la contrainte normale, lorsque le fluide s'échappe, cette contrainte n'est plus équilibrée et provoque le gonflement du jet [15]. Cet effet de gonflement intervient fréquemment dans les procédés d'extrusion des polymères fondus.

1.2 Techniques de mesures en rhéologie : Rhéométrie

Par l'intermédiaire de rhéomètres ou viscosimètres, on réalise des écoulements qui permettent, à partir de considérations géométriques et d'hypothèses sur l'écoulement, de relier les paramètres

macroscopiques (couple, vitesse de rotation, déplacement, ...) aux paramètres régissant la loi de comportement que sont en général la contrainte de cisaillement σ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ ou la déformation γ. Les rhéomètres souvent utilisés sont : les *rhéomètres capillaires* dont le principe est basé sur l'écoulement dans une conduite cylindrique, ou les *rhéomètres rotatifs* dans lesquels le fluide est cisaillé entre deux cylindres coaxiaux, entre deux plans ou entre un plan et un cône. Ces rhéomètres permettent de déterminer le comportement d'écoulement (loi de comportement $\sigma = f(\dot{\gamma})$) et le comportement viscoélastique des matériaux ($\sigma = f(t)$). Dans de tels tests, on soumet l'échantillon à une sollicitation constante ou oscillatoire [1], et on étudie sa réponse.

Dans le cadre de notre thèse, nous utiliserons un rhéométre rotatif à contrainte imposée pour caractériser les différent matériaux utilisés. Il s'agit du rhéomètre $AR2000$ équipé de diverses géométries de mesure (plan-plan, cône-plan, cylindres coaxiaux, vane). Le couple est imposé sur l'outil de mesure et transmis à l'échantillon qui répond en s'écoulant et entraîne la rotation de l'outil. La vitesse de rotation est mesurée et enregistrée par l'appareil [2]. Grâce aux facteurs géométriques des géométries F_σ et $F_{\dot{\gamma}}$, il est possible de déduire, à partir de ces données brutes de couple Γ et de vitesse Ω enregistrées, les valeurs de contrainte σ et de taux de cisaillement $\dot{\gamma}$.

$$\sigma = F_\sigma.\Gamma \tag{1.10}$$

$$\dot{\gamma} = F_\gamma.\Omega \tag{1.11}$$

1.2.1 Géométries de mesure

Le choix entre les différentes géométries se fonde sur deux critères : d'une part, si nous voulons obtenir les cisaillement les plus élevés possible $1000s^{-1}$, il faut donc utiliser la géométrie dont l'entrefer est faible (cône-plan). D'autre part, il faut avoir un rapport entre la dimension moyenne de l'entrefer et la taille des plus grosses particules le plus élevé possible (cylindres coaxiaux ou vane), pour satisfaire l'hypothèse de milieu continu. La pratique veut que l'entrefer soit supérieur d'au moins dix fois la taille des plus grosses particules constituant l'échantillon. Néanmoins, cette condition n'est pas toujours suffisante et dépend du matériau à étudier.

Nous avons utilisé les géométries : cône-plan, cylindres coaxiaux et Vane :

1.2.1.1 Géométrie cône-plan

Dans cette géométrie, le fluide est cisaillé entre un plan fixe et un cône tronqué en rotation (Fig.1.4). Son avantage principal réside dans le fait que le gradient de vitesse et la contrainte ne varient pas à l'intérieur du volume cisaillé, tant que l'angle du cône reste faible (environ 6°). La

[1] La sollicitation peut être une contrainte ou un cisaillement appliqués suivant le type de rhéomètre

[2] On retiendra que le couple et la vitesse sont mesurés sur le même outil de mesure

contrainte et le gradient de vitesse sont alors calculés à partir des mesures de couple et de vitesse de rotation en utilisant les facteurs géométriques donnés par :

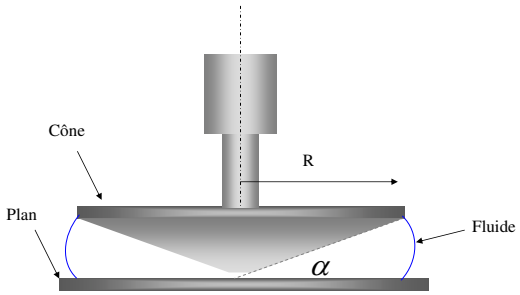


FIG. 1.4: *Géométrie cône-plan*

$$F_\sigma = \frac{3}{2\pi r^3} \tag{1.12}$$

$$F_\gamma = \frac{1}{tan\alpha} = \frac{1}{\alpha} \tag{1.13}$$

où α est l'angle du cône, R est le rayon du cône.

1.2.1.2 Géométrie à cylindres coaxiaux

Cette géométrie est constituée de deux cylindres coaxiaux (Fig.1.5). Le cylindre intérieur R_1 est en rotation et le cylindres extérieur R_2 est fixe, le fluide est cisaillé dans l'intervalle compris entre les deux cylindres. L'avantage principale de cette géométrie réside dans le fait que la distribution des contraintes est connue dans tous l'entrefer. En effet, la contrainte varie de manière proportionnelle à l'inverse du carré du rayon et donc plus l'entrefer est large plus la variation est importante. Il en résulte que le gradient de vitesse n'est pas homogène dans l'entrefer entre les cylindres. Mais en faisant l'hypothèse que l'espace entre les deux outils est faible ($R_2 - R_1 \ll R_1$), on déduit les facteurs géométriques moyennés valables pour les fluides newtoniens et faiblement rhéofluidifiants :

$$F_\sigma = \frac{R_2^2 + R_1^2}{4\pi h R_2^2 R_1^2} \tag{1.14}$$

$$F_\gamma = \frac{R_2^2 + R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} \tag{1.15}$$

où h représente la hauteur d'immersion du cylindre intérieur.

Cette hypothèse d'entrefer mince est introduite implicitement dans les rhéomètres commerciaux. Il est nécessaire, lors de l'utilisation d'entrefers larges, de vérifier les mesures données par l'appareil. Pour ce faire, des corrections sont apportées dans le cas des fluides non-newtoniens [16].

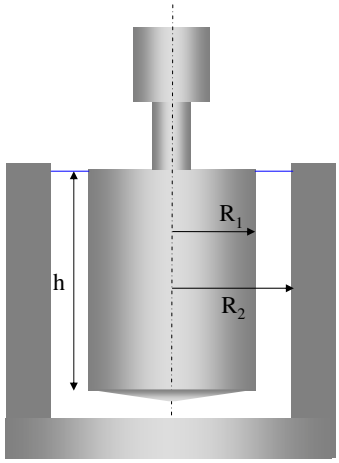


FIG. 1.5: *Géométrie à cylindres coaxiaux*

En outre, des méthodes plus générales de calcul des contraintes et des gradients de vitesse ont été développées par Nguyen et Boger [17]. Barnes [18] propose une relation valide, y compris dans le cas de la présence d'une zone rigide non cisaillée dans l'entrefer :

$$\dot{\gamma}(\sigma(R_1)) = 2\Omega \frac{dln\Omega}{dln\Gamma} \tag{1.16}$$

En plus, cette géométrie permet de faire des mesures à de très faibles vitesses de cisaillement.

1.2.1.3 Géométrie Vane

La géométrie *Vane* remplace la géométrie à cylindres coaxiaux dans la mesure où le cylindre intérieur peut être remplacé par un croisillon constitué de plusieurs pales (Fig.1.6). Dans ce cas, le rayon intérieur et la hauteur h sont ceux d'un cylindre effectif correspondant. Ils sont déterminés par la calibration de la géométrie avec des fluides newtoniens (Annexe A). Le principal avantage de cette géométrie réside dans la possibilité de réduire les effets de glissement, du fait que les contacts fluides/parois sont réduits. Elle est souvent utilisée pour mesurer les propriétés de fluides à seuil, et plus particulièrement le seuil de contrainte [16] [17] [18].

1.2.2 Phénomènes perturbateurs

La fiabilité des résultats expérimentaux nécessaires à la caractérisation du matériau est directement liée à la maîtrise de tous les paramètres influençant la mesure. Parmi les phénomènes indésirables pouvant intervenir au cours des essais rhéologiques, nous notons le problème d'évaporation de l'échantillon, les glissements au niveau des parois de la géométrie de mesure et l'inertie de l'appareil de mesure.

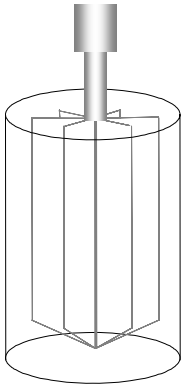


FIG. 1.6: *Géométrie Vane*

1.2.2.1 Problème d'évaporation

Ce problème apparaît au niveau de la surface libre de l'échantillon. Ce phénomène conduit à une diminution du volume étudié. Ceci pourrait se traduire par une sous-estimation de la viscosité apparente mesurée. D'un autre côté, une augmentation de la concentration massique de l'échantillon apparaît, qui se traduit par une sur-estimation de la viscosité apparente mesurée. Les techniques pratiques utilisées pour minimiser les effets de l'évaporation, consistent à travailler sous atmosphère saturée par le fluide intersticiel ou à placer un film liquide sur les surfaces libres. Dans notre cas, le dispositif de mesure est placé dans une ambiance saturée en vapeur d'eau au cours de toutes les manipulations.

1.2.2.2 Glissement aux parois

C'est le phénomène le plus couramment rencontré lors de l'étude rhéologique des fluides. Il peut être présent dans toutes les géométries d'écoulement et dépend de la nature du fluide. Le glissement résulte du cisaillement préférentiel d'une fine couche du fluide près des parois. Ce phénomène conduit à des erreurs sur les mesures, en particulier pour la mesure de la contrainte seuil avec un rhéomètre à contrainte imposée [19] [6] [11]. Dans le cas des suspensions comme les suspensions de bentonites, le glissement peut être favorisé par la migration des particules des régions pariétales (décroissance de la concentration solide près de la parois lisse), effet connu sous la dénomination d'effet *sigma* [20]. Cet effet a été abordé par beaucoup d'auteurs, comme Mooney [21] qui a signalé l'existence de ce phénomène aux parois. Yoshimura et Prud'homme [22] ont élaboré un modèle mathématique s'inspirant de celui de Mooney [21], leur méthode consiste à effectuer deux séries de mesures sur des géométries de même type (Couette ou disques parallèles) mais avec une seule caractéristique différente (par exemple : on fait des mesures avec différents entrefers dans une géométrie de disques parallèles). Dans un autre travail et dans le cadre de sa thèse, Bonifas [20] a repris la méthode de

calcul de Yoshimura et Prud'homme sur des suspensions de bentonite, en utilisant des géométries plan-plan ou cône-plan. Il a conclu que ce modèle réalise une correction acceptable.

En outre, à coté de ces méthodes de calcul, notons l'existence d'une autre méthode où l'effet de glissement est contrôlé expérimentalement. Il s'agit de rendre rugueuses les parois de la géométrie, pour augmenter le frottement. Plusieurs auteurs optent pour cette méthode [23]. En ce qui concerne nos mesures, nous utiliserons une géométrie cône rugueuse fournie par TA instrument qui a subi un traitement spécial et la géométrie vane qui réduit considérablement le glissement.

1.2.2.3 Inhomogénéité du matériau : sédimentation et migration

La sédimentation peut être distinguée par l'action de la pesanteur sur les particules constituant le fluide. La migration de ces particules peut être représentée, de manière simplifiée, par des couches visqueuses de valeurs différentes. Ce qui conduit à une hétérogénéité du matériau. Le déplacement des particules vers des zones préférencielles peut être différent suivant la géométrie utilisée et le matériau étudié. Ce phénomène a été observé pour des suspensions de particules non colloïdales [24]. La migration des particules provoque une hétérogénéité du cisaillement dans l'entrefer (shear-banding) et la fracturation du matériau.

1.2.2.4 Inertie de l'appareil

Comme la plupart des appareils de mesure, les rhéomètres à contrainte imposée peuvent rencontrer des problèmes d'inertie de la partie mobile du dispositif rotatif, lorsqu'une commande de saut leur est demandée. Autrement dit, lors de variation rapide de contrainte (ou de vitesse de cisaillement), le couple lié à l'inertie de la partie mobile conduit à des erreurs de mesure certaines. Donc, la contrainte réelle subie par le matériau est différente de la contrainte affichée. Krieger est le premier qui a étudié ces effets dans les rhéomètres à contrainte imposée [25] ; il obtient la couple réel subi par le matériau par la soustraction du couple appliqué (ou affiché) et du terme lié au moment d'inertie de l'appareil [25] :

$$I \cdot \frac{\partial^2 d_\theta}{\partial t^2} = \Gamma_{\text{appliqué}} - \Gamma_{\text{subi}} \tag{1.17}$$

où :

$\Gamma_{\text{appliqué}}$: le couple appliqué.

Γ_{subi} : le couple subi par le matériau.

I : le moment d'inertie de la partie mobile.

d_θ : le déplacement angulaire de la partie mobile.

Dans la pratique, la prise en compte de cette inertie par les constructeurs est gérée de façon différente en fonction du type de moteur. Dans les rhéomètres AR2000 et AR1000, la correction est prise en compte au niveau du logiciel pilote en activant l'option *correction*, puisque la géométrie est, au préalable, calibrée.

Outre les erreurs que peut introduire l'inertie de l'appareil sur les mesures standards. La prise en compte de l'inertie constitue un outil qui permet de caractériser le matériau de manière précise, [26] [27] [28]. Nous verrons en détail cette technique dans le chapitre 3 qui traite des mesures instationnaires sur le rhéomètre *AR2000* contrôlé en contrainte.

1.3 Matériaux utilisés : les polymères

Un polymère est une substance constituée de macromolécules composées de plusieurs unités de base (monomères). Le nombre moyen de ces unités s'appelle le *degré de polymérisation (n)*. Les monomères proviennent de l'assemblage covalent de petites molécules par une réaction chimique (la polymérisation ou la polycondensation, par exemple). Ainsi la macromolécule se présente sous la forme d'une chaîne moléculaire pouvant atteindre une longueur de plusieurs dizaines de micromètres (parfois même plus, comme dans le cas de l'ADN). Lorsque plusieurs types de monomères coexistent dans la macromolécule, on parle de co-polymère. Le polymère n'est généralement pas un corps pur (un seul type de molécules) et pour le caractériser il est nécessaire d'utiliser des données statistiques comme la *masse molaire moyenne*, la *composition chimique moyenne* ou le *degré de polymérisation*.

Dans les solutions diluées (faibles concentrations), les molécules sont en mouvement continu et elles assument différentes conformations dans des enroulements aléatoires. Comme avec la plupart des autres substances, afin de comprendre les propriétés des matériaux polymères on doit considérer un grand ensemble de molécules. Cependant, dans le cas des polymères, les molécules sont elles même très grandes. Pour atteindre ces informations de conformation, de distribution de masse ou de taille, il est nécessaire d'étudier le polymère en solution diluée pour s'affranchir des interactions intermoléculaires et accéder à la caractérisation de la macromolécule isolée (diffusion de la lumière, viscosimétrie, ...). Quant aux informations macroscopiques, elle peuvent être atteintes par des mesures rhéologiques.

Les polymères en solution aqueuse sont d'une très grande variété, ce qui a amené les scientifiques et les industriels à les classer dans différentes catégories en fonction de leurs structures, de leur nature, ou encore de leurs applications. Les polymères peuvent ainsi être d'origine naturelle (bactérienne, animale ou végétale) ou synthétique, flexibles ou rigides, neutres ou chargés. En effet, en milieu aqueux certains polymères portent des charges positives ou négatives et deviennent des polyélectrolytes tels le carboxyméthylcellulose (CMC) et le xanthane.

Grâce à leurs propriétés physiques exceptionnelles (épaississants, stabilisateurs, émulsifiants, ...), ainsi qu'à leurs comportements non newtoniens (rhéofluidifiant), les polymères trouvent leur place dans un grand nombre d'applications industrielles.

Dans notre travail de thèse, les matériaux étudiés sont des polymères industriels fournis généralement sous forme de poudre dispersée dans l'eau pour obtenir les différentes solutions. Dans ce qui suit, nous donnons une brève description physico-chimique de chaque matériau utilisé.

1.3.1 Emkarox ®

L'Emkarox ® est un copolymère constitué d'un mélange de polypropylène glycole (PPO) et de polyèthylène glycole (ou polyéthylène oxide (PEG)), (Fig.1.7). La macromolécule de l'Emkarox ® est donc composée de la répétition de deux monomères : celui du polypropylène glycole et celui du polyèthylène glycole.

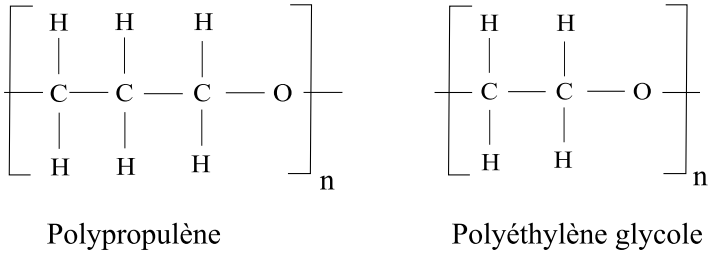


FIG. 1.7: *Structure moléculaire du Emkarox® : les deux monomères constituant la macromolécule de Emkarox*

Le Emkarox® HV45 (EMB62224, France) est fourni sous forme de liquide très visqueux transparent (quelques $Pa.s$). Sa préparation consiste à le diluer dans l'eau distillé pour diminuer sa viscosité de sorte à pouvoir le manipuler dans nos différentes expériences. Il s'agit d'un fluide qui a un comportement newtonien même lorsqu'il est sous forme de solution très visqueuse [29]. La masse moléculaire de sa macromolécule est d'environ 35000 g/l.

1.3.2 Carboxyméthylcellulose (CMC)

Le carboxyméthylcellulose (CMC) est un polymère dérivé de la cellulose naturelle (bois, coton, maïs, ...). Contrairement à la cellulose, le CMC est très soluble dans l'eau. Il est commercialisé sous forme de poudre jaune. Il est utilisé dans certains détergents (agent d'antiredéposition) en faibles concentrations $(0,5-1\%)$. Utilisé dans les boues de forage depuis longtemps, le CMC reste encore parmi les polymères les plus employés dans les forages pétroliers [30]. Il a aussi de nombreuses applications dans de multiples domaines : industrie textiles, cosmétique, agro-alimentaire, pharmaceutique, biologique ainsi que dans d'autres secteurs faisant appel à ses propriétés rhéologiques.

Le CMC a le squelette de la cellulose constituée d'un enchaînement de glucoses comme le montre la figure Fig.1.8. La présence sur chaque monomère de glucose de trois groupements hydroxyles, permet la formation de ponts hydrogène entre les structures cellulosiques. L'interaction entre les chaînes linéaires de cellulose est à l'origine de l'hydrosolubilité de ce polymère naturel dans de nombreux solvants notamment dans l'eau. Le CMC est considéré comme un polymère flexible (Fig.1.9) et la masse moléculaire de sa macromolécule est d'environ 90000 g/mol.

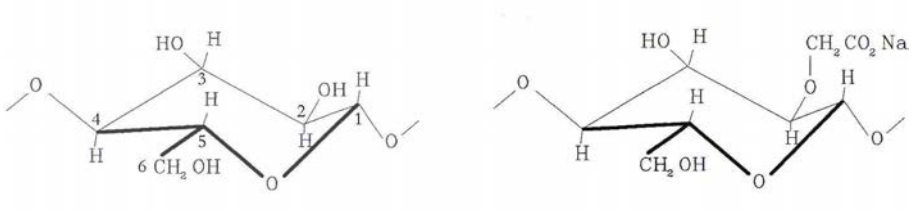


FIG. 1.8: *À gauche : structure de la molécule de cellulose. À droite : structure moléculaire d'un monomère de corboxyméthylcellulose [30]*

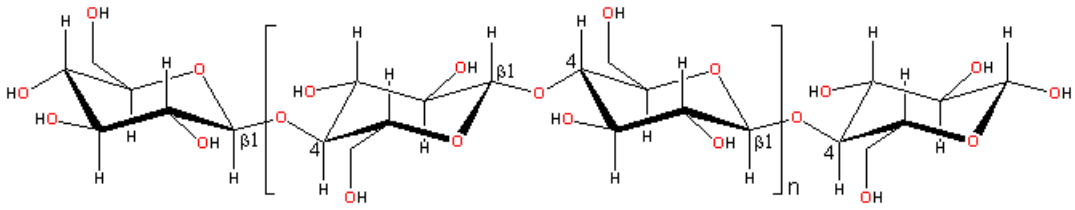


FIG. 1.9: *Macromolécule de corboxyméthylcellulose*

Pour la préparation des solutions, la poudre de CMC (fournie par AQUALON, France) est incorporée lentement dans de l'eau distillée à température ambiante sous agitation mécanique pour assurer le mélange de la solution préparée. Plusieurs concentrations en masse ont été préparées : 1%, 2%, 4%, 5% et 6%. Le CMC est l'un des polymères les plus faciles à mettre en solution si on le compare au xanthane ou au polyacrylamide modifié, utilisés dans notre travail (§.1.3.4). Les solutions homogènes obtenues sont laissées au repos à température ambiante pendant quelques jours dans le but d'atteindre un état d'équilibre, avant de procéder aux expériences.

1.3.3 Xanthane

La gomme de xanthane est un polysaccharide naturel, produit à partir de la bactérie *Xanthomonas campestris*, présente dans le sucre et la mélasse. Ce polymère est commercialisé essentiellement sous forme d'une poudre obtenue par précipitation du polysaccharide contenu dans le moût de fermentation à l'aide d'un solvant organique polaire [31]. Depuis sa découverte en 1950 par le Dé-

partement d'Agriculture des Etats-Unis, les domaines d'utilisation de ce biopolymère n'ont cessé de croître. Il est utilisé dans l'industrie cosmétique et pharmaceutique, dans les processus de récupération du pétrole, dans la confection des ciments pour le BTP, dans la formulation des peintures, ... Cependant, c'est dans les industries alimentaires que les propriétés rhéologiques du xanthane trouvent leurs principales applications.

Le xanthane est constitué d'une chaîne principale de cellulose qui porte un branchement latéral tous les 2 glucose (Fig.1.10). Deux groupements carboxyliques confèrent à la gomme de xanthane un caractère anionique. La présence des charges négatives sur la chaîne de xanthane facilite l'interaction soluté-eau, d'où l'hydrosolubilité de la gomme dès $10°C$.

De nombreux travaux se sont intéressés à l'étude du lien entre les interactions inter et intramoléculaires de la molécule de xanthane et son comportement rhéologique [32] [33]. On peut observer plusieurs ponts hydrogènes intermoléculaires sur la figure Fig.1.10. Ceux ci sont responsables de la grande rigidité de la structure hélicoïdale et de la résistance à l'écoulement. En d'autre termes, le comportement non-newtonien de la gomme de xanthane est à mettre en relation avec les conformations macromoléculaires. Ki-Wong [34] décrit la solution aqueuse du xanthane comme de longues chaînes moléculaires qui interagissent entre elles pour former des agrégats grâce aux liaisons hydrogènes et à l'enchevêtrement des macromolécules, ce qui explique la forte viscosité à faibles cisaillements, à partir d'une concentration en masse de 1% . Sous l'effet d'un cisaillement conséquent, l'enchevêtrement de particules désordonnées va progressivement se disposer en brins (bâtonnets) isolés, orientés dans le sens de l'écoulement [34]. Enfin le xanthane est connu comme étant un polymère semi-rigide et biréfringent [3] [35]. Les propriétés physico-chimiques du xanthane dépendent également des modes de préparation des solutions ainsi que de leurs concentrations.

Le xanthane est fourni par SKW Biosystems sous forme de poudre. Dans une solution d'eau distillée salée à 0.1 mol/l de NaCl (l'ajout de sel permet de détendre les chaînes de xanthane [36]), on a ajouté quelques gouttes (environ 0.05%) de formaldéhyde 37%, afin de limiter le développement des bactéries dans le milieu (dégradation des solutions). La poudre de xanthane est incorporée petit à petit dans la solution préparée (eau + sel + formaldehyde). La mise en solution est réalisée à froid (à température ambiante $T = 21°C$) sous agitation mécanique pendant 2 heures au minimum [4] ; les solutions homogènes obtenues sont chauffées jusqu'à $60°C$ pendant 45 minutes environ au bain-marie. Enfin, les solutions de xanthane ont été conservées dans un réfrigérateur à $4°C$ pendant quelques jours dans le but d'atteindre un état d'équilibre, avant de procéder aux expériences.

[3] La birefringence est une propriété optique liée à l'orientation des particules anisotropes. Par une technique de polarisation de la lumière, nous mesurerons ces propriétés dans le prochain chapitre

[4] le temps de mélange dépend de la concentration préparée : plus la concentration est élevée et plus le temps de mélange nécessaire est grand pour obtenir un matériau homogène

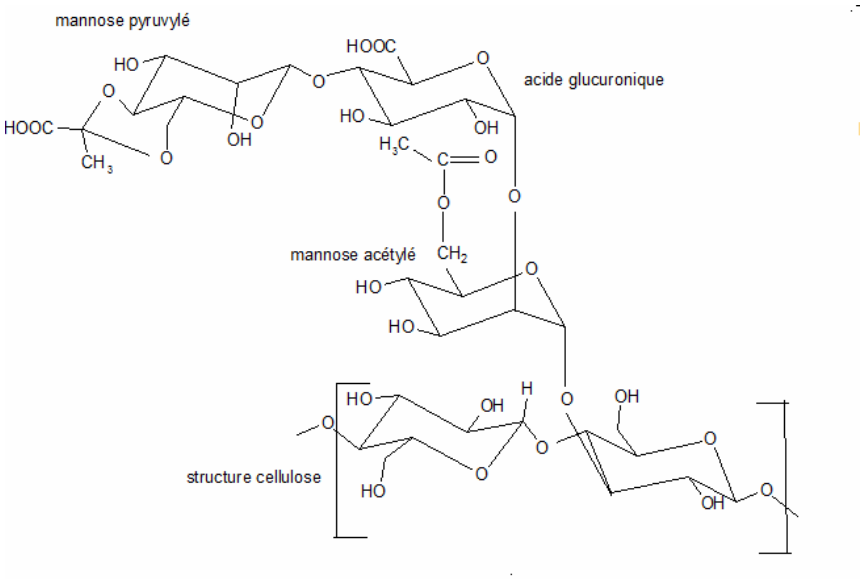


FIG. 1.10: *Structure chimique de la macromolécule du xanthane (extraite de http ://biochim-agro.univ-lille1.fr/polysaccharides/res/xanthane1.png)*

Plusieurs concentrations en masse de xanthane ont été préparées : 0.05%, 0.1%, 0.2%, 0.5% 0.7%, 1%, 1.5% et 2% .

1.3.4 Polyacrylamide (modifié)

Le polyacrylamide est un polymère formé à partir du procédé de polymérisation [5] d'acrylamide (monomère) permettant la synthèse du polymère de polyacrylamide (Fig.1.11). L'acrylamide est un produit utilisé dans l'industrie des plastiques, ou qui peut apparaître spontanément lors de la cuisson de certains aliments à plus de $120°C$. C'est une molécule cancérigène et toxique, elle est considérée par l'OMS comme présentant un risque pour la santé humaine. Elle se forme lors de la cuisson (friture, rôtissage ...) à haute température d'aliments riches en hydrate de carbone (amidon, sucres) et en protéines.

Le polyacrylamide modifié, contrairement à l'acrylamide qui est neurotoxique, n'est pas toxique mais il doit être manipulé avec précaution car il peut contenir des résidus d'acrylamide. C'est un gel hautement absorbant. Sous forme de poudre, il se dilue dans l'eau, après agitation vigoureuse, pour former un gel visqueux à partir d'une conentration en masse de 0.02%. L'intérêt de ce polymère peut

[5] La polymérisation est une réaction qui, à partir de molécules de faibles masses moléculaires (monomères), forme par les liaisons de celles-ci, des composés de masse moléculaire élevée (macromolécules)

être apprécié dans son caractère de fluide non newtonien qui constitue un bon exemple d'application de l'effet Weissenberg : le fluide, soumis à l'action d'un agitateur magnétique remonte au centre du récipient au lieu de se plaquer sur les côtés, comme le font les fluides newtoniens classiques, comme l'eau.

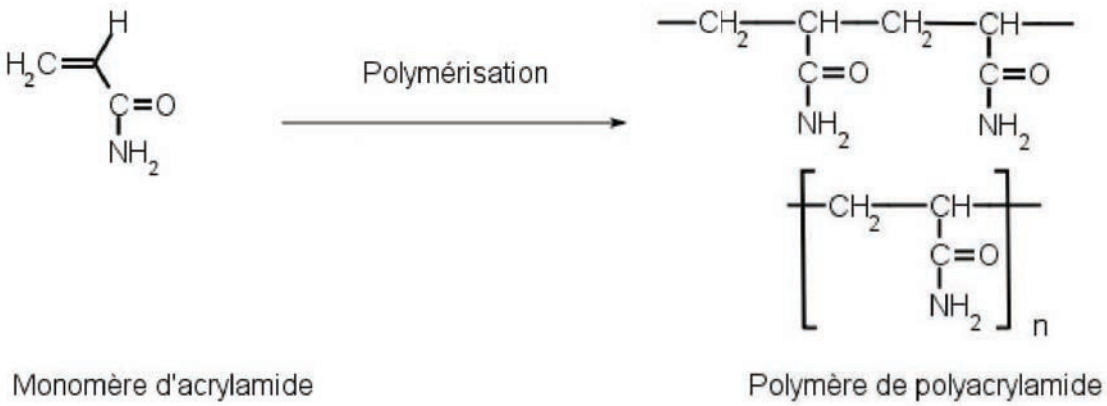


FIG. 1.11: *Structure de la macromolécule du polyacrylamide (http : //fr.wikipedia.org/wiki/Image : Polyacrylamide-polymerisation.png)*

La préparation du polyacrylamide se fait en mélangeant la poudre de polyacrylamide dans de l'eau distillée sous agitation mécanique pendant plusieur heures, dans le but d'obtenir une solution homogène. Ce mélange est d'autant plus difficile que la concentration est plus importante. Nous avons préparé plusieurs solutions de concentrations de : 0.01%, 0.02%, 0.05%, 0.1%, 0.2%, 0.5%, 0.7% et 1%. Les solutions obtenues sont laissées au repos à température ambiante ($21°C$) pendant quelques jours dans le but d'atteindre un état d'équilibre, avant de procéder aux expériences.

1.3.5 Carbopol 940

Le Carbopol 940 est un carbomère produit à partir du monomère d'acide acrylique dont la structure moléculaire est donnée dans la figure Fig.1.12. Il se présente sous forme de poudre blanche

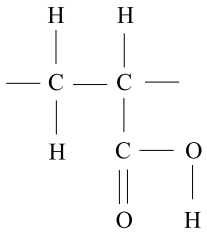


FIG. 1.12: *Structure moléculaire du Carbopol 940*

dispersée dans l'eau. Les macromolécules se déploient graduellement jusqu'à atteindre plusieur

fois leurs volume intial après neutralisation avec de l'hydroxyde de sodium NaOH ($pH \cong 7$). Ce gonflement des structures polymériques donne naissance à des microgels (*blobs*), et c'est le contact entre ces microgels qui est responsable des propriétés gélifiantes du Carbopol (Fig.1.13).

Le carbopol en solution aqueuse présente des caractéristiques très recherchées dans plusieurs applications industrielles. De part son caractère non-newtonien (viscoélastique, rhéofluidifiant, ...), stabilisateur d'émulsions ou encore épaississant, il a la particularité d'être parfaitement transparent même à de fortes concentrations. Les domaines d'application de ce polymère sont vastes et variés : industries pharmaceutique, cosmétique, agro-alimentaire, BTP, ... Ainsi le Carbopol est utilisé non seulement dans le developppement de nombreux produits commerciaux, mais aussi par les ingénieurs chimistes et les rhéologues.

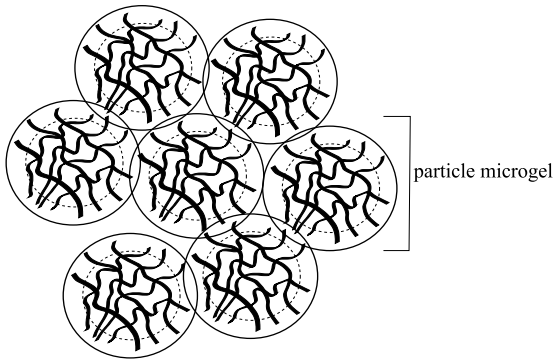


FIG. 1.13: *Structure microgel schématisée du Carbopol*

De nombreux travaux se sont intéressés à ce matériau et à ses propriétés rhéologiques [6] [37]. Le Carbopol en solution aqueuse est décrit par Carnali et Naser [38] comme une structure de microgels composés de particules concentrées de polymère fortement réticulé (Fig.1.13), qui individuellement sont gélifiées mais ensemble, ces particules forment une dispersion concentrée, même si la concentration du polymère dans l'eau est faible. L'extérieur de la particule constitue une extrémité libre du microgel. Cette dernière interagit fortement avec les extrémités libres des autres particules adjacentes formant ainsi la structure du carbopol, ce qui explique la forte viscosité du Carbopol sous faibles contraintes de cisaillement, au delà d'une concentration en masse de 0.07%.

1.4 Caractéristiques rhéologiques : régime instationnaire

1.4.1 Nombre de Déborah

L'écoulement d'un matériau visqueux ne peut être observé que si le temps d'observation de l'expérience t_E dure assez longtemps. Mais assez longtemps par rapport à quoi ? Bien évidemment,

cette condition d'écoulement n'a de sens que si t_E est comparé à un autre temps indépendant de l'expérience et propre au matériau, c'est le *temps caractéristique* t_C qui ne dépend que des propriété du matériau [1]. Ce temps peut être le temps caractéristique de relaxation thixotrope, qui est la durée de vie d'une microstructure dont l'ordre de grandeur est le temps nécessaire aux réarrangement interne. Ou alors le temps de ralaxation viscoélastique déterminé par le raport entre le module élastique et la viscosité du matériau η/G.

Le comportement général des matériaux, sous cisaillement, est donc fixé par le nombre de *Déborah* De, défini comme étant le rapport entre le temps caracatéristique du matériau t_C et le temps d'observation de l'expérience t_E.

$$De = \frac{t_C}{t_E} \tag{1.18}$$

- Lorsque $De \gg 1$, la structure n'a pas eu le temps de se modifier profondément au cours de l'expérience et seule sa déformation élastique peut être observée. On voit le matériau se comporter comme un **solide**, on parle alors de **comportement élastique aux temps courts**.
- Lorsque $De \ll 1$, l'écoulement visqueux est observé. Dans ce cas, on voit le matériau se comporter comme un **liquide**, on parlera alors de **comportement visqueux aux temps longs**.
- Lorsque $De \sim 1$, un comportement intermédiaire sera observé, il s'agit du comportement **viscoélastique** ou encore thixotrope.

1.4.2 Thixotropie et cinétique de structure

La viscosité obtenue lors des mesures sous écoulement n'est pas toujours constante sous cisaillement constant. En effet, pour certains fluides complexes, cette viscosité évolue au cours du temps d'observation (Expérience), sous cisaillement (ou contrainte de cisaillement) fixé. Si un fluide au repos soumis à un cisaillement (passage d'un état plus structuré à un état moins structuré) voit sa viscosité diminuer à taux de cisaillement constant, on dit que le fluide est thixotrope ; si en revanche elle augmente, le fluide est anti-thixotrope [5] [39]. Dans les deux cas, ce comportement doit être réversible. La variation de la viscosité indique que la structure du fluide évolue sous cisaillement, avant de se stabiliser, en régime stationnaire. En général, ce phénomène est mis en évidence par l'apparition d'une boucle d'hystérésis lors du tracé de la courbe d'écoulement en charge puis en décharge. On parle de comportement thixotrope lorsque la contrainte en décharge (descente) est plus faible que celle en charge (montée) pour un même taux de cisaillement. La figure Fig.1.14 représente une boucle d'hystérésis typique (xanthane 2%). La courbe a été tracée en appliquant une succession de contraintes dont chacune dure 1 minute, nous avons mesuré deux cisaillements

pour chaque contrainte : un cisaillement au bout de 3 secondes(temps court), et un deuxième au bout de 1 *minute* (temps long).

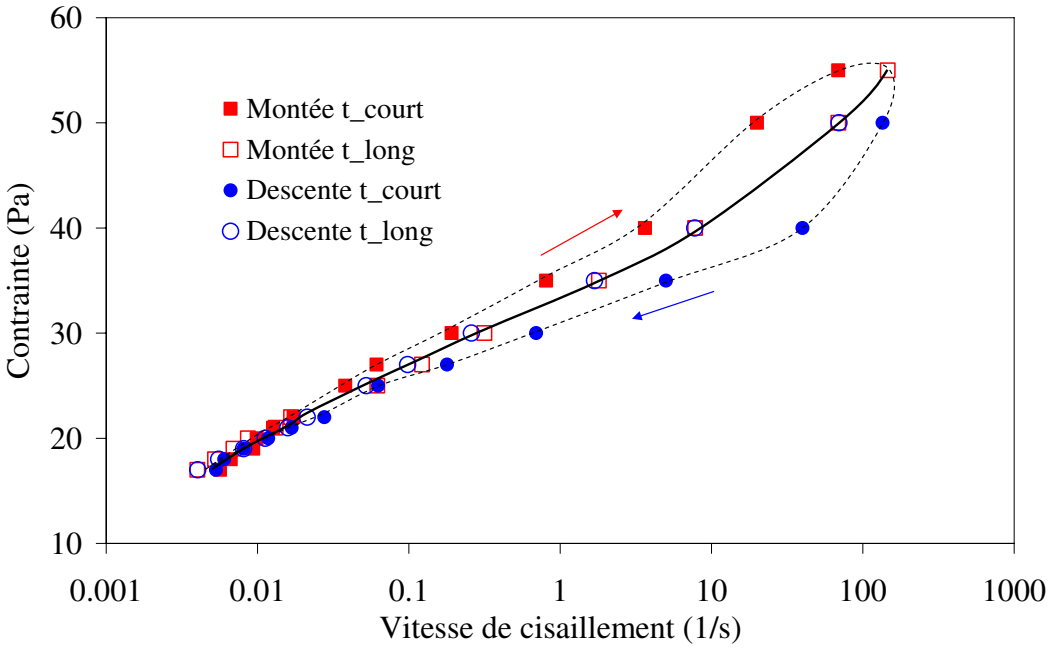


FIG. 1.14: *Courbe d'hystérésis typique obtenue par des mesures sur le rhéomètre à contrainte imposée AR2000 avec la géométrie Vane (xanthane 2%)*

Pour décrire précisément ce type de comportement, il faut s'intéresser de près à la nature rhéofluidifiante du matériau. En effet, ce comportement s'explique par la rupture progressive de la structure du xanthane, lorsque les forces hydrodynamiques (forces de contraintes imposées) deviennent supérieures aux forces de cohésion entre les particules (bâtonnets) de xanthane. La rupture du réseaux physique tridimensionnel se fait en entités (unités structurelles) de plus en plus petites, ce qui diminue progressivement la quantité d'eau piégée par le réseau et, par conséquent, la viscosité apparente du matériau diminue aussi [1] [40]. La reconstruction de ce réseau, c'est-à-dire le retour des particules à des positions de minimum d'énergie libre (état d'équilibre), se fait au cours du temps, sous l'action du mouvement brownien. Lors de la décharge progressive (descente), les cisaillement mesurés sont plus importants car les interactions détruites n'ont pas eu le temps de se rétablir. Aux temps longs, ces interactions se stabilisent, ce qui se traduit par la relaxation du matériau i.e une même valeur de la viscosité en charge et en décharge (Fig.1.14).

1.4.3 Viscoélasticité

La viscoélasticité est un comportement intermédiaire entre le comportement d'un solide élastique et celui d'un fluide visqueux. En 1867, Maxwell a fait remarquer qu'à une échelle de temps

suffisamment faible, tous les fluides sont viscoélastiques ($De \sim 1$). Cette échelle n'est manifestement pas la même pour l'eau et pour cette pâte à modeler en silicone [5]. L'eau s'étale très rapidement sur le sol (fluide visqueux) sous l'effet de son poids, contrairement à la balle de silicone qui rebondi instantanément (solide élastique) mais qui finit par couler au bout de quelques minutes (fluide visqueux). C'est pour cela qu'à l'échelle de temps de nos observations, l'eau est toujours un fluide visqueux newtonien.

Le comportement viscoélastique d'un matériau peut être observé à travers la réponse en déformation d'un échelon de contrainte (fluage) :

- Soumis à une faible amplitude de contrainte σ, le matériau aura, pour les temps longs ($De \ll 1$), une vitesse de déformation proportionnelle à la contrainte ($\sigma = \eta\dot{\gamma}$) avec une viscosité constante. Pour les temps courts ($De \gg 1$), le matériau aura une déformation élastique constante ($\sigma = G\gamma$). Dans le domaine des temps intermédiaires ($De \sim 1$), cette limite de faibles amplitude est celle de la **viscoélasticité linéaire** avec une viscosité newtonienne et une élasticité Houkéenne.
- Soumis à de plus grandes amplitude de contrainte σ, la déformation du matériau n'est plus proportionnelle à l'excitation σ et le comportement du matériau est non newtonien. Ainsi à $De \sim 1$, on parle de la **viscoélasticité non linéaire** [1].

La figure Fig.1.15 représente le comportement viscoélastique linéaire à faible amplitudes, et le comportement viscoélastique non linéaire pour une grande amplitudes de σ.

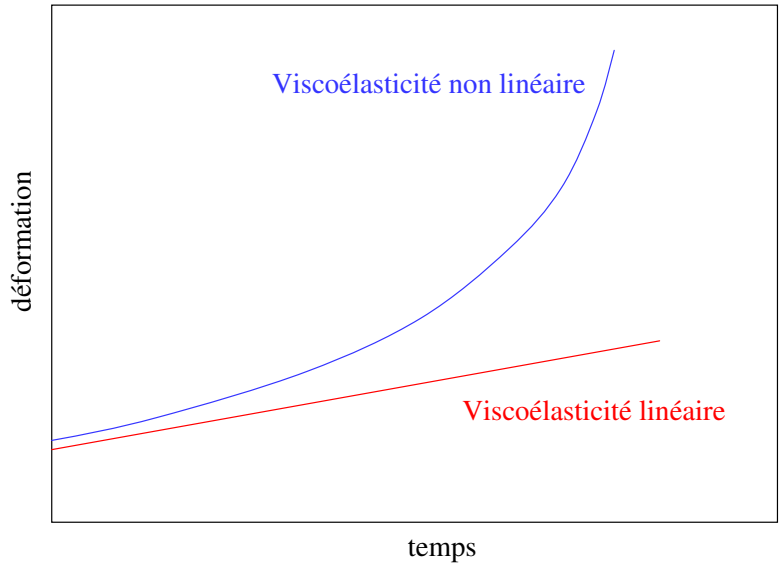


FIG. 1.15: *Comportement d'un fluide viscoélastique en réponse à un échelon de contrainte de petite (rouge) et grande (bleu) amplitudes*

Équations de la viscoélasticité

Généralement, les équations de la viscoélasticité font intervenir un spectre de temps de relaxation t_C intervenant dans l'expression de γ ou de σ sous forme de produit de convolution. Ainsi que le temps et la sollicitation (contrainte imposée ou déformation imposée) :

$$\gamma(t) = \int_{-\infty}^{t} J(\sigma, t-\tau)\left(\frac{d}{d\tau}\sigma(\tau)\right) d\tau \tag{1.19}$$

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^{t} G(\gamma, t-\tau)\left(\frac{d}{d\tau}\gamma(\tau)\right) d\tau \tag{1.20}$$

où l'élasticité G et la complaisance J sont les fonctions matérielles de cisaillement.

On parle de viscoélasticité linéaire lorsque la réponse du matériau change peu sous cisaillement, et que les fonctions matérielles du cisaillement (module élastique G ou fonction de fluage J) ne dépendent que du temps :

– *Solide élastique* : Dans ce cas, l'équation rhéologique est la loi de Hooke qu'on écrit sous la forme :

$$\sigma = G.\gamma \tag{1.21}$$

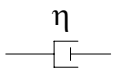
où G est le module élastique. La déformation est proportionnelle à la contrainte, si celle-ci s'arrête, la déformation redevient instantanément nulle. Ce comportement est schématisé par un ressort qui récupère sa forme initiale lorsque l'on supprime la contrainte qu'il a subie.



– *Fluide visqueux newtonien* : Dans ce cas, l'équation rhéologique est donnée par l'équation :

$$\sigma = \eta.\dot{\gamma}$$

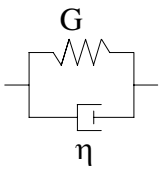
sous l'effet de la contrainte, la déformation croît linéairement avec le temps : le liquide s'écoule indéfiniment. Lorsque l'on supprime la contrainte, la déformation demeure constante et égale à la valeur qu'elle possédait avant la suppression de la contrainte. La déformation est donc irrécupérable. Ce comportement visqueux est schématisé par un amortisseur qui ne récupère pas la déformation qu'il a subi.



Cette schématisation (ressort, amortisseur) constitue la représentation graphique de base des modèles analogiques représentant le comportement du matériau. Le modèle le plus simple du matériau viscoélastique est représenté par :

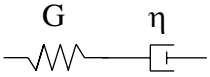
– le modèle de solide de *Kelvin-Voigt*, qui est l'association en parallèle d'un ressort et d'un amortisseur. Il consiste à additionner les contraintes d'origine élastiques et les contraintes d'origine visqueuse :

$$\sigma = G.\gamma + \eta.\dot{\gamma} \tag{1.22}$$



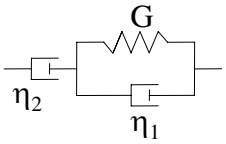
– ou le modèle du *fluide de Maxwell*, qui est l'association en série d'un ressort et d'un amortisseur. Dans ce cas, les déformations élastique et visqueuse s'additionnent et les contraintes sont identiques, soit :

$$\dot{\gamma} = \frac{1}{G}\dot{\sigma} + \frac{\sigma}{\eta} \tag{1.23}$$



Chacun des modèles de Kelvin-Voigt et de Maxwell fait apparaître un temps caractéristique viscoélastique (temps de relaxation carctéristique) : $t_C = \eta/G$.

Il est à noter que l'association de ces modèles de base en série et/ou en parallèle peut constituer des modèles viscoélastiques plus complexes. Le modèle de *Maxwell-Jeffrey* qui est l'association en série d'un Kelvin-voigt et d'un amortisseur est le modèle le plus général qui décrit à la fois un solide et un liquide viscoélastiques. On peut passer d'un comportement à l'autre en appliquant des valeurs limites aux différents éléments de ce modèle.



Expérimentalement, le comportement viscoélastique peut être mis en évidence en examinant l'évolution temporelle de la réponse du fluide [26] [28]. Il y a essentiellement trois types d'expérience : le fluage (creep), la relaxation de contrainte et la sollicitation oscillante. Les détails de chaque test utilisé seront donnés dans le chapitre 3.

Notons que la notion de *viscoélasticité retardée* est liée aux échelles de temps et de taille du système en question. Nous y reviendrons dans les chapitres 3 et 4.

1.5 Conclusion

Les différentes notions abordées dans ce chapitre permettent d'introduire l'étude rhéologique des différents matériaux, et de prendre les précautions nécessaires concernant les mesures rhéométriques afin de mener à bien une caractérisation rigoureuse, en régime stationnaire (loi de comportement, rhéofluidification) ou instationnaire (viscoélasticité, thixotropie).

Chapitre 2

Rhéométrie stationnaire : Description structurelle

Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre précédent, tous les comportements macroscopiques, déterminés par des mesures rhéométriques, sont à relier à la structure du matériau. Bien que ces interprétations restent délicates, des modèles structuraux existent pour lier les comportements rhéologiques aux comportements microscopiques. Dans le présent chapitre, nous avons tenté d'apporter une description structurelle au comportement rhéofluidifiant, sous écoulement stationnaire, de différentes solutions aqueuses de polymères. Ce chapitre comporte deux parties : la première consiste à utiliser un modèle structurel de sphères hydrodynamiques, la seconde consiste à effectuer des mesures de biréfringence.

Sommaire

2.1 Polymère en solution aqueuse 39

2.2 Relation viscosité-fraction volumique : (modèle des sphères dures) . . 40

2.3 Relation viscosité-structure 45

2.4 Application aux solutions de polymères étudiées : CMC, Xanthane et Polyacrylamide 46

2.5 Mesure de biréfringence sur des solutions de Xanthane 57

2.6 Conclusion 67

2.1 Polymère en solution aqueuse

Les forces d'interactions internes agissant au niveau des polymères, peuvent être séparés en deux types d'interactions suivant qu'on se place en *milieu dilué* (interactions fluide-polymère), en milieu *semi-dilué* ou en *milieu concentré* (interactions polymère-polymère). Généralement, les polymères en solution aqueuse s'organisent sous forme d'un réseau transitoire de macromolécules (particules) dans lequel les liaisons intermoléculaires se forment et se rompent au cours du temps. Certains polymères, comme les polymères hydrophobes incompatibles avec le fluide suspendant, peuvent être considérés comme des dispersions d'*unités structurelles* constituées d'une seule macromolécule ou d'un groupement de macromolécules qui peuvent piéger un certain volume du fluide suspendant (solvant).

Le comportement hydrodynamique des macromolécules dépend des interactions polymère-solvant, mais il est lié également aux interactions polymère-polymère à partir d'une certaine concentration. Cette concentration critique est appelée *concentration de recouvrement géométrique* $c*$; elle délimite deux domaines de concentrations : dilué et semi-dilué [41]. Le régime semi-dilué peut se diviser en deux sous régimes : *non enchevêtré* et *enchevêtré* [42].

En solution diluée ($c \ll c^*$), la distance séparant deux particules les plus proches est grande par rapport à leur rayon (Fig.2.1). Les particules sont donc libres de se déplacer dans le milieu sous l'action des forces browniennes, chaque macromolécule est considérée comme isolée et les interactions entre molécules et solvant sont prédominantes. Les interactions entre chaînes de polymères sont minimisées et la macromolécule s'étend librement donc au maximum.

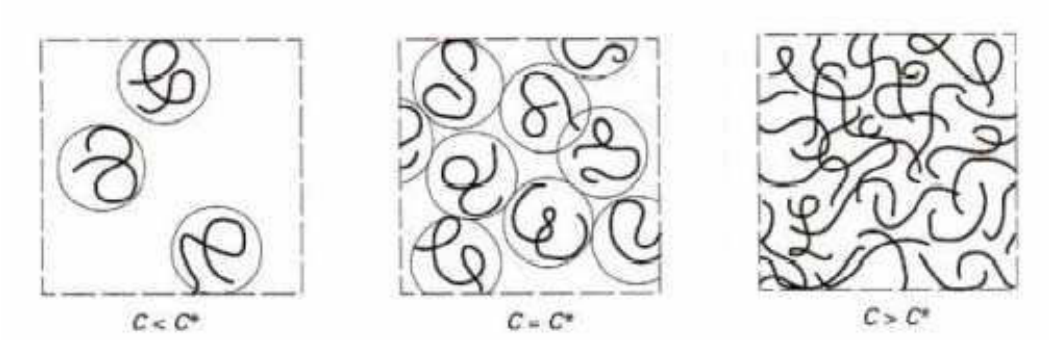


FIG. 2.1: *Représentation schématique de la concentration critique de recouvrement (c∗) séparant les domaines dilués et semi-dilués [41]*

En revanche, pour des solutions plus concentrées, les interactions hydrodynamiques entre les particules ne sont plus négligeables et la probabilité de collision entre particules peut devenir considérable. Les enchevêtrements entre macromolécules apparaissent, et les interactions polymère-

polymère deviennent prédominantes. Dans ce cas, la solution est dite milieu *semi-dilué* et la concentration est supérieure à c^*. Lorsque les polymères sont de même nature, on aura plutôt des répulsions par effet stérique : les polymères se repoussent et s'excluent mutuellement de l'espace qu'ils remplissent. Dans le cas contraire, les interactions sont essentiellement attractives et les polymères s'attirent mutuellement et s'attachent entre eux. Ces deux cas d'interaction résument le fait que certains polymères comme les polysaccharides se comportent comme des épaississants s'ils sont seuls et comme des gélifiants s'ils sont associés à un autre type de polymères.

Lorsque la concentration croît encore, on définit une deuxième concentration critique c^{**}, de transition entre les régimes semi-dilué et concentré. Le mouvement des particules est gêné par les autres particules qui se trouvent non loin. A cette gêne correspond une augmentation de la viscosité du milieu, le système étant considéré comme une suspension concentrée. L'augmentation de la concentration du polymère dans la solution confère à cette dernière des propriétés rhéologiques importantes comme le comportement viscoélastique et le caractère rhéofluidifiant marqué. Généralement, une transition solide-gel survient pour des concentrations légèrement supérieures à c^{**}.

2.2 Relation viscosité-fraction volumique : (modèle des sphères dures)

2.2.1 Un peu d'histoire

Les particules suspendues dans un fluide apportent une perturbation à l'écoulement de ce fluide, qui se traduit par un supplément d'énergie dissipée par frottement visqueux, conduisant à une viscosité η supérieure à la viscosité du fluide suspendant η_f. Lorsque le fluide est une suspension très diluée ($\phi \prec 1\%$), les volumes des particules n'interagissent pas entre eux, ils sont donc indépendants. Einstein a montré que la perturbation apportée à l'écoulement est, dans ce cas là, proportionnelle au nombre de particules, donc à une augmentation de l'énergie dissipée par unité de volume i.e directement proportionnelle à la fraction volumique ϕ, [43] :

$$\frac{\eta}{\eta_f} = (1 + 2.5\phi) \tag{2.1}$$

Pour des fractions volumiques un peu plus grandes, les volumes relatifs à chaque particule peuvent s'interpénétrer, donnant naissance à des interactions hydrodynamiques entre ces particules d'où une augmentation supplémentaire de η. Batchelor et Green corrigent la relation d'Einstein (Eq.2.1) en ajoutant un terme d'ordre 2, pour prendre en compte les interactions entre deux particules [44] :

$$\frac{\eta}{\eta_f} = \left(1 + 2.5\phi + (2.5\phi)^2\right) \tag{2.2}$$

Pour des valeurs de ϕ encore plus élevées, il est impossible de décrire la contribution des interactions existantes. En effet, dans ce cas là, le problème relève à la fois de l'hydrodynamique et de la thermodynamique statistique. Néanmoins, il existe dans la littérature de nombreux travaux décrivant la relation entre la fraction volumique et la viscosité sous conditions stationnaires. Ces modèles phénoménologiques se basent sur des approches théoriques, on peut citer la théorie de Russel et Gast [45] qui est une extension de la théorie de Batchelor, en prenant en compte les interactions thermodynamiques entre toutes les particules, mais en ne considérant que les interactions hydrodynamiques entre paires de particules. Une expression générale a été donnée reliant la viscosité relative à la fraction volumique [46] :

$$\frac{\eta}{\eta_f} = \left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right)^{-q} \tag{2.3}$$

où ϕ^* est la fraction volumique de paking aléatoire. ϕ^* est directement liée à $c*$. Cette valeur se situe entre la valeur du paking dense aléatoire ϕ_0^* et celle du paking dense maximal ϕ_∞^* (l'arrangement cubique à face centré).

En 1977, Quemada [10] a obtenu une équation du même type que l'équation Eq.2.3 mais avec $q = 2$, son modèle est basé sur le principe de minimisation de l'énergie dissipée par effets visqueux [1]. Il a appliqué ce principe en écoulement non-inertiel de dispersion de sphères dures en supposant possible une variation de la fraction volumique dans la direction transversale de l'écoulement :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_f} = \left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right)^{-2} \tag{2.4}$$

où ϕ^* est la fraction volumique de paking aléatoire. ϕ^* varie entre $\phi^* = 0.64$ pour $Pe \to 0$ et $\phi^* = 0.71$ pour $Pe \to \infty$.

Le point de départ donc de la modélisation rhéologique de ces fluides est de considérer le système comme une dispersion de sphères dures de rayon a dans un fluide newtonien. La figure Fig.2.2 représente la relation entre la viscosité et la fraction volumique dans le régime stationnaire, à faibles ($Pe \to 0$) et à fortes contraintes de cisaillement ($Pe \to \infty$), dans une dispersion de sphères dures [47].

De façon générale, le comportement d'un fluide (composé de particules et de fluide newtonien) dépend de l'énergie mécanique et du temps de réarrangement [2]. La viscosité est donc fonction, en plus de la fraction volumique ϕ, de l'énergie mécanique et du temps à travers la fraction volumique d'empilement $\phi^*(Pe, De)$. Afin de modéliser ces systèmes complexes, on utilise l'analyse dimensionnelle suivante [1].

[1] Le principe de minimisation de l'énergie dissipée garantit que parmi tous les écoulements possibles, l'écoulement non-inertiel est celui qui dissipe le minimum d'énergie [1]

[2] C'est le temps caractéristique thixotrope

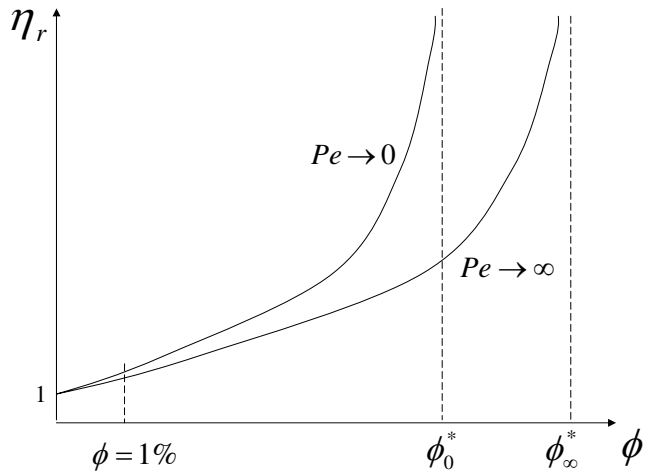


FIG. 2.2: *Représentation schématique de la relation viscosité-Structure à faibles ($Pe \to 0$) et à fortes contraintes de cisaillement ($Pe \to \infty$) dans une dispersion de sphères dures*

2.2.2 Nombres adimensionnels

Un tel système (particule solide + fluide newtonien) a une viscosité η, il est constitué de particules (de taille a, de densité numérique N [3], de masse volumique ρ_p), de fluide suspendant (de masse volumique ρ_f, de viscosité η_f) et des grandeurs fixées par l'observateur (vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$, température T, et le temps d'observation t_E). En admettant les hypothèses suivantes [1] :

- Le rapport des masses volumiques du fluide et des particules est proche de 1 (les particule ne sédimentent pas).
- Le nombre de Reynolds particulaire est très petit : $Re = \rho_f \dot{\gamma} a^2/\eta_f \ll 1$ (les effets d'inertie à l'échelle des particules sont négligeables)

On obtient une relation unique reliant les différents paramètres caractéristiques du système, cette relation permet d'exprimer la viscosité relative sous la forme :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_f} = \eta_r(\phi, Pe, De) \tag{2.5}$$

où : $\phi = NV_p = \frac{4\pi}{3} N a^3$ est la fraction volumique

$De = \frac{t_{arr}}{t_E}$ est le nombre de Deborah hydrodynamique, t_{arr} est le temps de réarrangement interne, t_E est la durée de l'expérience.

$Pe = \frac{W_H}{U}$ est le nombre de Peclet, W_H est l'énergie hydrodynamique, U est l'énergie d'interaction.

[3] N est le nombre de particules par unité de volume

En régime stationnaire, le nombre de Deborah étant très petit $De \rightarrow 0$ (car le temps d'observation est long), la relation Eq.2.5 devient :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_f} = \eta_r(\phi, Pe) \tag{2.6}$$

2.2.3 Particule isolée

Dans un milieu dilué, en l'absence d'écoulement, les forces browniennes sont dues à l'agitation thermique des molécules du fluide suspendant. Sous écoulement, des forces hydrodynamiques (pression et frottement) viennent s'ajouter aux forces browniennes. La résultante de ces forces est la force de stokes, dont l'expression dans le cas des sphères se déplaçant à la vitesse $\vec{v}$ est données :

- par : $\vec{f_{St}} = -6\pi\eta_f a\vec{v}$, dans le cas de la translation,
- par : $\vec{f_{St}} = -8\pi\eta_f a\vec{v}$, dans le cas de la rotation.

Le coefficient de diffusion brownienne d'une particule isolée est donc donné par :

$$D_0 \propto \frac{k_B T}{\eta_f a} \tag{2.7}$$

$k_B = 1.38.10^{-23}$ est la constante de Boltzmann.

2.2.4 Milieux dilué, semi-dilués et concentrés

Lorsque la fraction volumique $\phi \prec 1\%$, le nombre de Peclet hydrodynamique est défini comme le rapport de l'énergie hydrodynamiques $F_H.a \approx \eta_f \dot{\gamma} a^3$ sur l'énergie thermique browniennes $k_B T$. Il est donné par :

$$Pe \approx \frac{\eta_f \dot{\gamma} a^3}{k_B T} = \frac{\sigma a^3}{k_B T} = \frac{\sigma}{\sigma_c} \tag{2.8}$$

où :

$$\sigma_c = \frac{K_B T}{a^3} \tag{2.9}$$

Lorsque $\sigma \cong \sigma_c$, l'énergie hydrodynamique est du même ordre que l'énergie thermique brownienne.

Lorsque la fraction volumique augmente, les particules voient leur distance moyenne diminuer. En deçà d'une certaine distance interparticulaire, les forces d'interactions potentielles entre particules peuvent devenir suffisamment importantes $U \geq k_B T$, pour faire apparaître une organisation structurelle en l'absence des forces hydrodynamiques.

Sous cisaillement, si l'énergie hydrodynamiques W_H atteint ou dépasse l'énergie d'interaction potentielle U nécessaire pour faire sortir une particule de son état d'équilibre, les éléments structurels sont brisés en plus petits éléments. La taille de ces éléments est d'autant plus petites que W_H est grande.

Dans un milieu concentré, pour prendre en compte les interactions d'une particule avec ses voisines, on considère que la diffusion brownienne de cette particule a lieu dans un milieu *effectif* ayant, en première approximation, une viscosité voisine de celle de la suspension η. Ainsi dans l'équation Eq.2.8, on remplace η_f par η, ce qui conduit à définir un nouveau nombre de Peclet pour les systèmes semi-dilués et concentrés :

$$Pe(\sigma) \approx \frac{\eta\dot{\gamma}a^3}{U} = \frac{\sigma a^3}{U} = \frac{\sigma}{\sigma_c} \tag{2.10}$$

Lorsque $\sigma \cong \sigma_c$, l'énergie hydrodynamique est du même ordre que l'énergie d'interaction.

Les courbes qui représentent la viscosité relative en fonction du nombre de Peclet (ou de la contrainte) sont des courbes maîtresses (Fig.2.3), où $\eta(\phi)$ est la viscosité de la suspension et $\eta_f(\phi)$ est la viscosité du fluide suspendant.

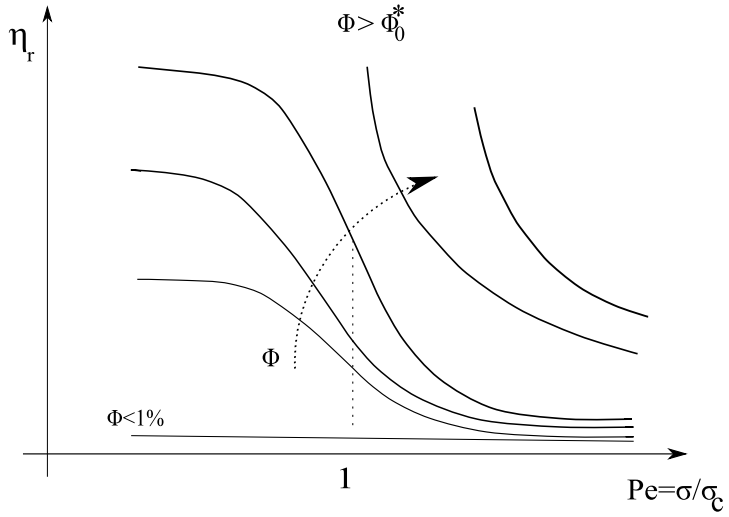


FIG. 2.3: *Courbes maîtresses décrivant le comportement de la viscosité relative en fonction du nombre de Peclet*

Lorsque $Pe \to 0$, l'énergie d'interaction est prédominante, on détermine une viscosité relative à faibles contraintes de cisaillement :

$$\eta_{r,0} = \eta_0(\phi)/\eta_f(\phi) \tag{2.11}$$

$\eta_0(\phi)$ est la viscosité à très faibles contraintes de cisaillement ($Pe \to 0$).

Lorsque $Pe \to \infty$, c'est l'énergie hydrodynamique qui prédomine, on détermine une viscosité relative à fortes contraintes de cisaillement :

$$\eta_{r,\infty} = \eta_\infty(\phi)/\eta_f(\phi) \tag{2.12}$$

$\eta_\infty(\phi)$ est la viscosité à très fortes contraintes de cisaillement ($Pe \to \infty$).

Le point d'inflexion de chaque courbe correspond à la contrainte caractéristique σ_c où $Pe \sim 1$. Lorsque la fraction volumique hydrodynamique ϕ est faible (milieu dilué $\phi \prec 1\%$), l'énergie d'interaction U se réduit à l'énergie brownienne $U \sim k_B T$. Sous la contrainte caractéristique σ_c, l'energie hydrodynamique $W_H \approx F_H a = \sigma a^3$ est de l'ordre de grandeur de l'énergie brownienne. Lorsque la fraction volumique hydrodynamique augmente (i.e la concentration du polymère), la courbe maîtresse se déplace vers les viscosités les plus élevées. L'écart entre $\eta_{r0}(\phi)$ et $\eta_{r\infty}(\phi)$ augmente et la contrainte caractéristique σ_c devient plus élevée (Fig.2.3, Fig.2.2).

2.3 Relation viscosité-structure

Dans le but de lier le comportement macroscopique (viscosité) de certaines solutions de polymères au comportement microscopique (structure), nous avons utilisé le modèle structural de Quemada appliqué à des dispersions de particules sphériques, en utilisant le concept de fraction volumique effective ϕ_{eff}. Du fait que le polymère peut piéger un certain volume de fluide suspendant, ϕ_{eff} est défini comme l'ensemble du volume pris au piège par les éléments du système (volume exclu). Dans l'équation Eq.2.4, la fraction volumique peut être remplacée par la fraction volumique effective $\phi = \phi_{eff}$, lorsque cette dernière est suffisamment élevée, apparaît une dépendance du nombre de Peclet $\phi_{eff}(Pe)$, et la solution montre un comportement non newtonien sous cisaillement. ϕ_{eff} peut aller de $\phi_0^* = 0.64$ pour les faibles cisaillements ($Pe \to 0$) à $\phi_\infty^* = 0.71$ pour les forts cisaillements ($Pe \to \infty$) (Fig.2.2). La viscosité relative peut être exprimée sous la forme, [48] :

$$\eta_r(\sigma) = \frac{\eta_\infty}{\eta_f}\left(\frac{1 + Pe^p}{\chi + Pe^p}\right)^2 \tag{2.13}$$

où p est la pente de la courbe au point d'inflexion (Fig.2.3), $Pe = \sigma/\sigma_c$ est le nombre de Peclet et χ dépend de la fraction volumique, il est le paramètre qui joue le rôle d'*index rhéologique* :

$$\chi = \frac{1 - \frac{\phi_{eff}}{\phi_0^*}}{1 - \frac{\phi_{eff}}{\phi_\infty^*}} \equiv \left(\frac{\eta_\infty}{\eta_0}\right)^{1/2} \tag{2.14}$$

η_0 et η_∞ représentent les viscosités limites du paking maximal respectivement à faibles ($\sigma \to 0$) et à fortes ($\sigma \to \infty$) contraintes de cisaillement :

$$\eta_{r,0} = \left(1 - \frac{\phi_{eff}}{\phi_0^*}\right)^{-2} \tag{2.15}$$

$$\eta_{r,\infty} = \left(1 - \frac{\phi_{eff}}{\phi_\infty^*}\right)^{-2} \tag{2.16}$$

ϕ_{eff} est exprimé en fonction de la fraction volumique hydrodynamique ϕ :

$$\phi_{eff} \approx \alpha\phi \tag{2.17}$$

$\alpha = 1$ quand la concentration réelle des objets de polymère est très petite.
$\alpha = \frac{V_p}{V_{objet}}$, lorsque la concentration devient considérable du fait du volume exclu $V_p \succ V_{objet}$ [4]. (V_p est le volume de la particule, V_{objet} est le volume hydrodynamique de l'objet (polymère)).

Dans la suite nous mènerons une étude sur différentes solutions de polymères, en utilisant le modèle de Quemada pour les dispersions de particules sphériques.

2.4 Application aux solutions de polymères étudiées : CMC, Xanthane et Polyacrylamide

La modélisation du comportement de la viscosité stationnaire sous cisaillement a pour but de déterminer les différents paramètres du modèle (η_0, η_∞, et U) et leur évolution avec l'augmentation de la fraction volumique des particules ϕ dans le milieu. L'interprétation de ces résultats nous permet une description qualitative de la structure du matériau sous cisaillement.

2.4.1 Hypothèses

L'application du modèle de Quemada sur les solutions aqueuses de Carboxyméthylcellulose (CMC), du Xanthane et du Polyacrylamide (PAM), est une large approximation des différents paramètres du problème. En effet, nous admettons, à priori, un certain nombre d'hypothèses :

- les solutions de polymères sont considérées chacune comme étant un milieu de particules dispersées,
- les particules dispersées sont considérées comme des sphères hydrodynamiques de rayon a,
- la fraction volumique hydrodynamique du milieu effectif ϕ_{eff} est liée à la densité volumique des sphères (particules) dans le milieu :

$$\phi_{eff} = N_a V_a \tag{2.18}$$

où : N_a est la densité numérique des particules sphériques de rayon a dans le milieu.
$V_a = \frac{4}{3}\pi a^3$ est le volume de la particule.

- la fraction volumique en objets élémentaires est proportionnelle, en première approximation, à la concentration massique c (Fig.2.1). Ainsi, on peut écrire :

$$\phi_{eff} = \alpha^{'}.c \tag{2.19}$$

$\alpha^{'}$ caractérise le volume du fluide suspendant (eau) piégé par le polymère.

[4] Le paramètre α dans l'Eq.2.17 carcatérise la quantité du volume piégé par les objets de polymère

2.4.2 Courbes d'écoulement

Les mesures des courbes d'écoulement ont été effectuées par C. Hanotin au cours d'un stage au sein du LEMTA.

Les mesures de différentes concentrations de solutions polymères de CMC, Xanthane, Polyacrylamide [5], sont effectuées à température ambiante $21°C$ et dans les mêmes conditions : géométrie cône-plan (60mm), milieu saturé, rhéomètre AR2000. La procédure de mesure est la suivante (Fig.2.4) :

- pré-cisaillement (1 minute) : nous appliquons un échelon de vitesse de cisaillement important $\dot{\gamma}_{max}$ pendant une minute,
- un temps de repos (2 minutes) : le matériau se restructure alors et au bout de deux minutes, il acquière un état structurel que nous appelons **état de référence**,
- échelons de vitesse de cisaillement successifs montée-descente (1 minute chacun) : nous appliquons des échelons de vitesse de cisaillement successifs à partir du cisaillement nul jusqu'à une vitesse de cisaillement maximale délimitée par l'outil de mesure (§.1.2). Ces échelons sont appliqués en montée et en descente ($\dot{\gamma} : 0 \rightarrow \dot{\gamma}_{max} \rightarrow 0$).

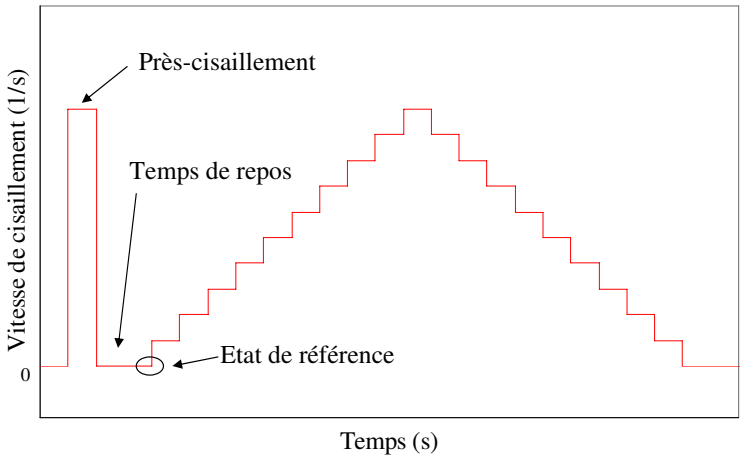


FIG. 2.4: *Schémas de la procédure appliquée pour des mesures de la viscosité stationnaire sous cisaillement*

Les valeurs de la viscosité données par le rhéomètre correspondent chacune à un échelon de vitesse de cisaillement appliqué. Il s'agit de la viscosité stationnaire (viscosité aux temps longs). Les courbes de la viscosité en fonction de la contrainte appliquée en montée et en descente, apportent une information sur la dépendance temporelle du comportement stationnaire de chaque solution. En d'autres termes, les courbes obtenues nous informent sur le caractère thixotrope (ou non) de la

[5] La préparation de chaque solution a été décrite dans le chapitre 1

solution. Enfin et comme pour chaque mesure, la reproductibilité de tous les résultats est vérifiée.

2.4.3 Résultats

Nous avons regroupé les différentes concentrations de chaque polymère dans un même graphe : Carboxyméthylcellulose (CMC) dans la figure Fig.2.5, le Polyacrylamide (PAM) dans la figure Fig.2.6 et le Xanthane dans la figure Fig.2.7. L'ensemble des courbes d'écoulement obtenues ($\eta = f(\sigma)$) décrivent un comportement rhéofluidifiant, elles ont la forme générale d'une courbe maîtresse (Fig.2.3), décrite dans le paragraphe §.2.2,Les courbes obtenues pour le CMC ne font apparaître qu'une seule région newtonienne à cause des limitations expérimentales. Il est donc difficile de déterminer une viscosité η_∞ à fortes contraintes de cisaillement ou une contrainte caractéristique lorsque la concentration augmente. C'est pour cette raison que la modélisation sur le CMC n'était pas effectuée.

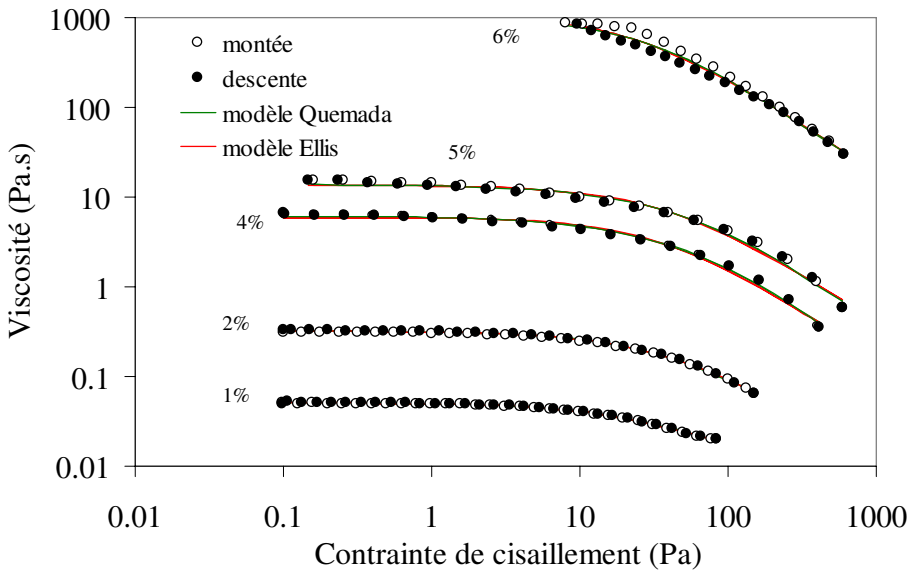


FIG. 2.5: *Courbes d'écoulement montée-descente du Carboxyméthylcellulose (CMC) à différentes concentrations en masse :* 1, 2, 4, 5 *et* 6%

Nous avons ajusté le modèle d'Ellis (Eq.1.5) et de Quemada (Eq.2.13) sur les courbes d'écoulement obtenues par la méthode des moindres carrés. L'ajustement montre que ces deux modèles décrivent un comportement rhéofluidifiant pour chaque solution présentée. Les courbes montée-descente sont superposées, preuve du caractère non thixotrope des solutions. Remarquons que pour les plus fortes concentrations, les inflexions (aux deux extrémités de chaque courbe) des courbes de viscosité suffisent pour déterminer les deux valeurs de la viscosité η_0 et η_∞.

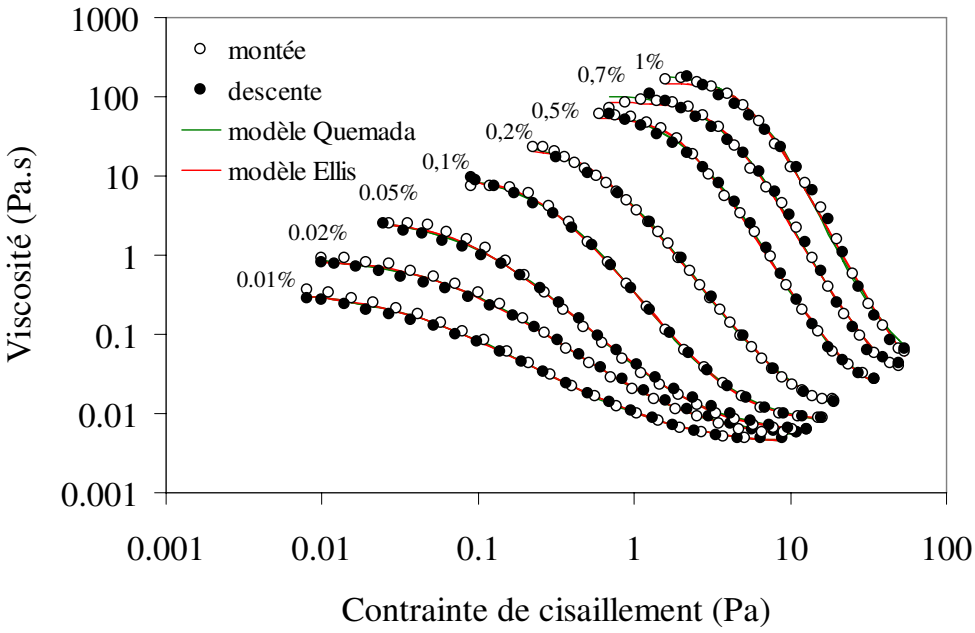


FIG. 2.6: *Courbes d'écoulement montée-descente du Polyacrylamide à différentes concentrations en masse :* 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 0.7 *et* 1%

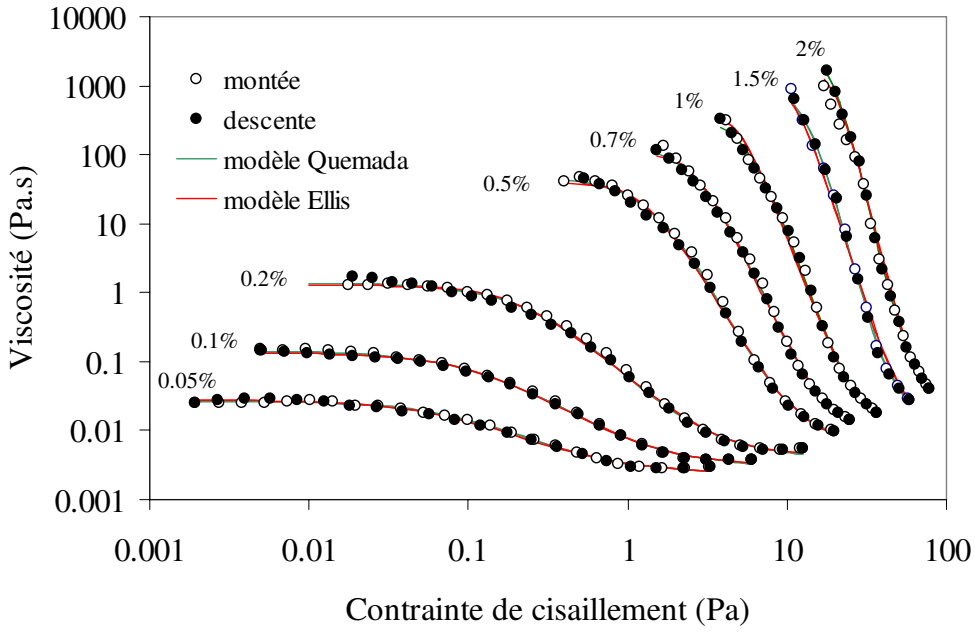


FIG. 2.7: *Courbes d'écoulement montée-descente du Xanthane à différentes concentrations en masse :* 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 0.7, 1, 1.5 *et* 2%

En outre, nous avons déterminé un ordre de grandeur de la taille moyenne a (rayon des particules sphériques) pour chaque polymère. Pour ce faire, nous avons utilisé les courbes d'écoulement pour la plus faible concentration de chaque polymère (PAM, Xanthane), où l'énergie d'interaction est de l'ordre de grandeur de l'énergie brownienne $U \sim k_B T$. Sous la contrainte caractéristique σ_c, l'énergie hydrodynamique est de l'ordre de grandeur de l'énergie d'interaction :

$$W_H = \sigma_c a^3 \approx U \tag{2.20}$$

ce qui nous permet d'accéder à un calcul dimentionnel de la taille moyenne a par l'équation Eq.2.21, elle est de l'ordre de $200nm$ pour le polyacrylamide, et de $100nm$ pour le xanthane :

$$a \approx \left(\frac{k_B T}{\sigma_c}\right)^{1/3} \tag{2.21}$$

Il est à noter que la taille des particules de la CMC calculée pour la concentration de 1% est de $30nm$. Cette taille étant plus petite que celle du PAM et du xanthane, la contrainte caractéristique correspondante $\sigma_c = \frac{U}{a^3}$ sera beaucoup plus grande, ce qui explique pourquoi le deuxième plateau newtonien n'apparaît pas sur les courbes d'écoulement du Carboxyméthylcellulose (Fig.2.5).

2.4.4 Discussion

2.4.4.1 Viscosité à fortes contraintes de cisaillement η_∞

La figure Fig.2.8 représente les viscosités à fortes contraintes de cisaillement pour le Polyacrylamide et le Xanthane obtenue par les équations Eq.2.16 et Eq.2.19.

$$\eta_\infty = \eta_f . \left(1 - \frac{\alpha' . c}{\phi^*_\infty}\right)^{-2} \tag{2.22}$$

Les courbes représentant η_∞ montrent le bon accord du modèle de Quemada avec les mesures obtenues, ce qui indique que la destructuration du polymère (Polyacrylamide et Xanthane) provoquée par l'énergie mécanique à fortes contraintes de cisaillement est totale, ce qui montre que le matériau se comporte comme un milieu composé de petites entités, d'un point de vue hydrodynamique.

Nous avons déterminé les paramètres du fit du modèle de Quemada (Eq.2.22) sur les différentes concentrations du palyacrylamide et du xanthane dans le tableau Tab.2.1, pour les fortes contraintes de cisaillement $Pe \to \infty$. Nous avons fixé ϕ^* à la valeur théorique du paking maximum ϕ^*_∞. La viscosité η_f du milieu effectif, dans lequel les particules sont en suspension, est de l'ordre de 4 à 7 fois celles de l'eau à cause de la présence des particules de polymère qui perturbe l'écoulement, il en résulte une viscosité supérieure à celle du fluide suspendant (eau). Néanmoins, η_f reste de l'ordre

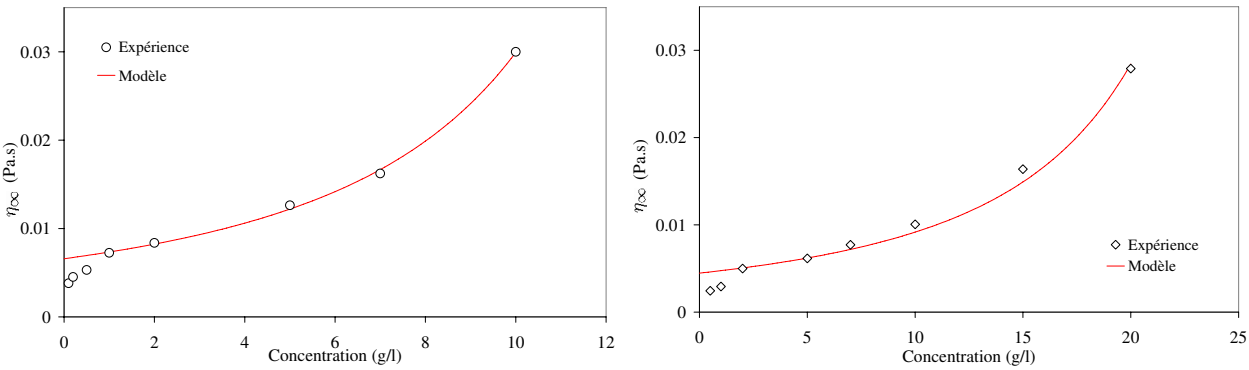


FIG. 2.8: *Comportement de la viscosité à fortes contraintes de cisaillement η_∞ avec la concentration, le modèle est obtenu à partir des équations Eq.2.22. A gauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane.*

	ϕ^*	$\alpha^{'}$	η_f
Polyacrylamide	0.7	37.17	7.10^{-3}
Xanthane	0.7	19.61	4.10^{-3}

TAB. 2.1: *Paramètres du modèle de viscosité stationnaire de Quemada.*

de grandeur de la viscosité de l'eau.

Les valeurs obtenues de $\alpha^{'}$, montrent que la quantité de fluide piégée dans le cas du PAM est plus grande que celle du Xanthane. Ce qui s'explique par la plus grande taille des particules du PAM, qui lui donne une aptitude à piéger une plus grande quantité de fluide suspendant (eau).

2.4.4.2 Viscosité à faibles contraintes de cisaillement η_0

La figure Fig.2.9 représente les viscosités à faibles contraintes de cisaillement pour le Polyacrylamide et le Xanthane obtenue par les équations Eq.2.15 et Eq.2.19.

$$\eta_0 = \eta_f . \left(1 - \frac{\alpha^{'}.c}{\phi_0^*}\right)^{-2} \tag{2.23}$$

Les courbes représentant η_0 montrent que le modèle ne peut pas décrire le comportement de la viscosité à faibles contraintes de cisaillement. La modélisation en sphères n'est donc pas possible, ceci peut s'expliquer par la formation de grossess structures « sur-structuration » due à un potentiel d'interaction important aux faibles contraintes de cisaillement. Le milieu ne peut être considéré comme une dispersion de petites sphères.

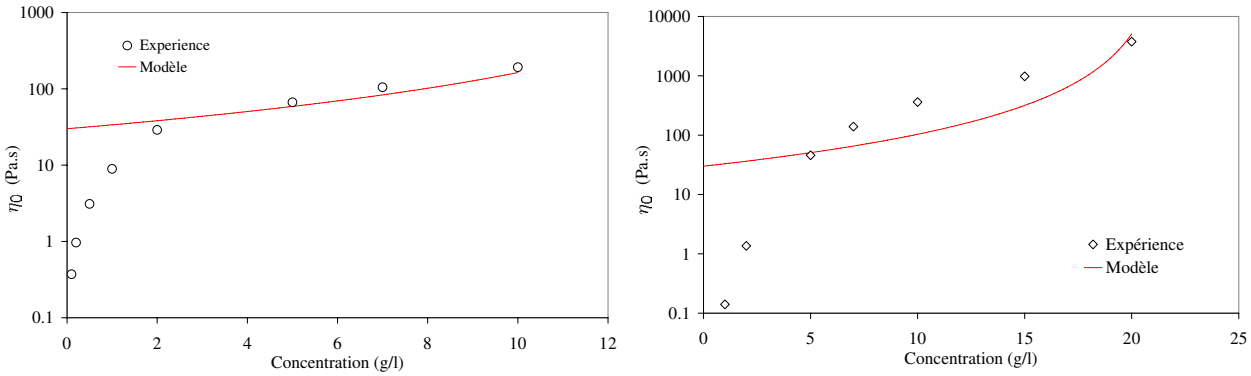


FIG. 2.9: *Comportement de la viscosité à faibles contraintes de cisaillement η_∞ avec la concentration, le modèle est obtenu à partir des équations Eq.2.23. A gauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane.*

2.4.4.3 Étude de l'énergie d'interaction

Contrainte caractéristique σ_c

Comme nous l'avons évoqué plus haut, le nombre de Peclet est le rapport de l'énergie hydrodynamique W_H à l'énergie d'interaction U. La contrainte critique σ_c est, par définition, la contrainte lorsque $Pe \sim 1$. Il est donc intéressant d'utiliser cette contrainte caractéristique dans le but d'étudier l'énergie d'interaction entre deux particules séparées d'une distance D. On considère donc l'équation Eq.2.20 pour $\sigma = \sigma_c$, où σ_c est directement liée à l'énergie de destructuration du matériau. La contrainte caractéristique augmente avec la concentration de la solution comme le montre la figure Fig.2.10. Cette augmentation est linéaire aussi bien pour les solutions de Polyacrylamide que pour les solutions de Xanthane (Fig.2.6, Fig.2.7).

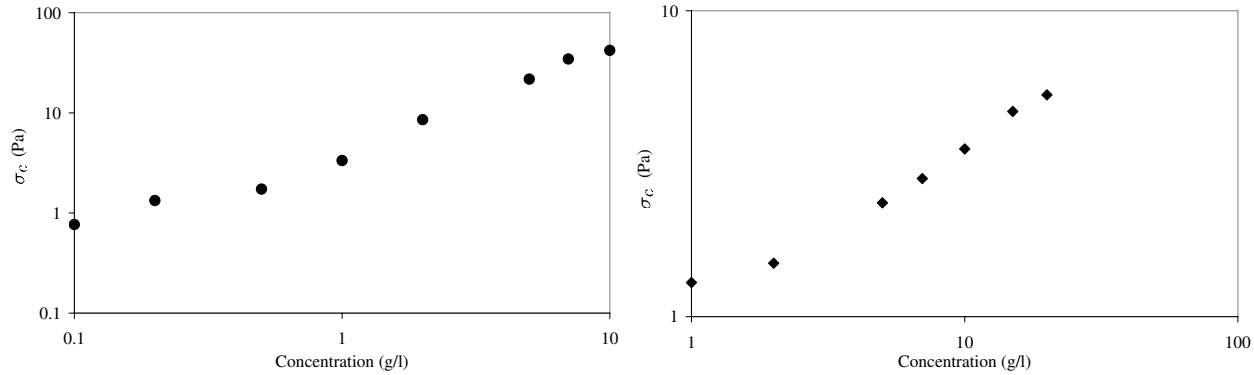


FIG. 2.10: *Evolution de la contrainte critique σ_c avec la concentration. A guauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane*

L'énergie d'intéraction dépend de la contrainte caractéristique qui elle-même dépend de la concentration de la solution donc de la fraction hydrodynamique en particules ϕ. Nous exprimons

alors une relation entre la fraction volumique ϕ_{eff} et la distance moyenne entre deux particules D, pour déterminer ensuite la relation entre U et D.

Relation distance moyenne entre deux particules - fraction volumique

On considère une paire de particules et on les grossit virtuellement jusqu'à ce qu'elles se touchent, de manière à obtenir de nouvelles sphères virtuelles de rayon R (Fig.2.11).

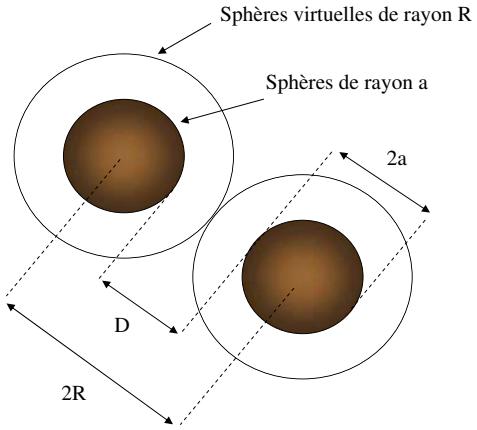


FIG. 2.11: *Schéma représentatif d'une paire de particules sphériques séparées d'une distance D*

On définit alors une nouvelle fraction hydrodynamique virtuelle ϕ_{vir} qui traduit la fraction volumique en particules lorsqu'elles se touchent, elle correspond à la fraction du paking aléatoire $\phi*$:

$$\phi_{vir} = N_a V_R \cong \phi^* \tag{2.24}$$

avec $V_R = \frac{4}{3}\pi R^3$ est le volume des sphères virtuelles.

En considérant l'équation Eq.2.18, nous avons obtenu l'expression du rayon R des sphères virtuelles en fonction de la fraction volumique hydrodynamique :

$$R = a\left(\frac{\phi^*}{\phi_{eff}}\right)^{1/3} \tag{2.25}$$

Sachant que $D = 2R - 2a$ (Fig.2.24), nous avons déterminé alors la relation liant D à ϕ :

$$D = 2a\left[\left(\frac{\phi^*}{\phi_{eff}}\right)^{1/3} - 1\right] \tag{2.26}$$

où :

$\phi_{eff} = \alpha^{'}.c$ et c est la concentration en masse,
$a \approx \left(\frac{k_B T}{\sigma_c}\right)^{1/3}$,
ϕ^* et $\alpha^{'}$ sont donnés par le tableau Tab.2.1.

La figure Fig.2.12 représente la distance relative $D/2a$ en fonction de la concentration. Lorsque la concentration augmente, la fraction volumique hydrodynamique augmente également car il y a de plus en plus de particules et la distance entre les deux sphères diminue. La comparaison des deux courbes de Xanthane et du PAM montre, d'une part, un comportement similaire de $D/2a$ avec la concentration. D'autre part, nous remarquons que pour une même concentration (i.e fraction volumique), la distance relative entre particules de Xanthane est supérieure à celle du PAM. Ceci se traduit par un comportement rhéofluidifiant similaire et une plus forte viscosité du PAM sous cisaillement pour une même concentration en masse de polymère, par exemple : Xanthane 0.2% et PAM 0.2% sur la figure Fig.2.13.

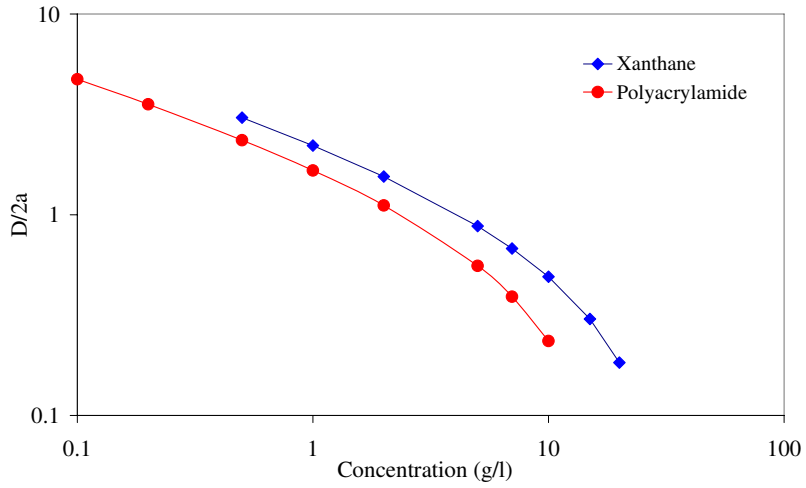


FIG. 2.12: *Comportement de la distance inter-particulaire D avec la concentration*

Détermination de l'énergie potentielle d'intéraction $U(D)$

Il est intéressant d'étudier le comportement de l'énergie d'interaction relative à l'énergie brownienne en fonction du rapport $D/2a$. Nous avons pu décrire cette évolution avec une courbe exponentielle décroissante pour les deux polymères étudiés (Polyacrylamide et Xanthane), sur la figure Fig.2.14. L'énergie d'interaction est très importante lorsque $D/2a$ est petit car les particules se rapprochent lorsque la concentration augmente. Cette énergie diminue fortement lorsque $D/2a$ augmente, jusqu'à ce qu'elle devienne de l'ordre de grandeur de l'énergie brownienne k_BT pour les faibles concentrations ($D/2a$ très grand), où les particules n'interagissent qu'avec le fluide suspendant (eau). Enfin, le potentiel d'interaction est plus important entre particules de Polyacrylamide que celui entre particules de Xanthane. Il est donc plus facile de casser la structure du Xanthane que celle du Polyacrylamide.

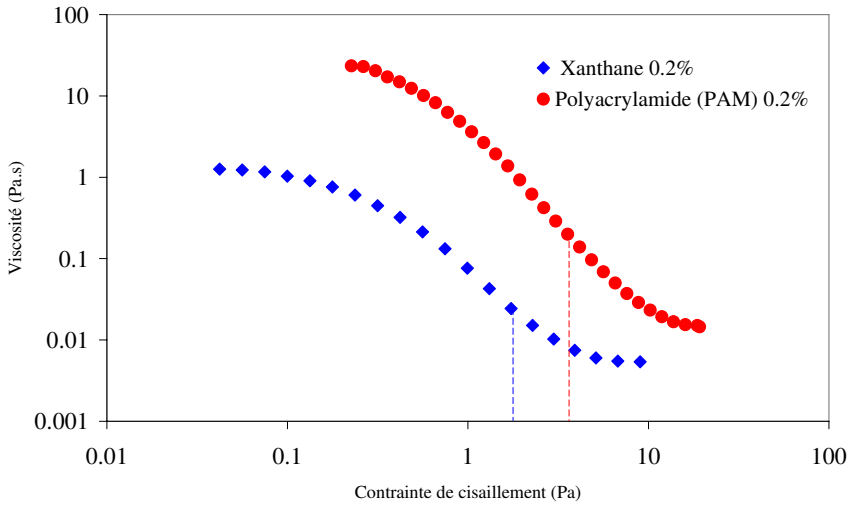


FIG. 2.13: *Comparaison du comportement de la viscosité sous cisaillement du Xanthane 0.2% et du Polyacrylamide 0.2%, pour une même concentration*

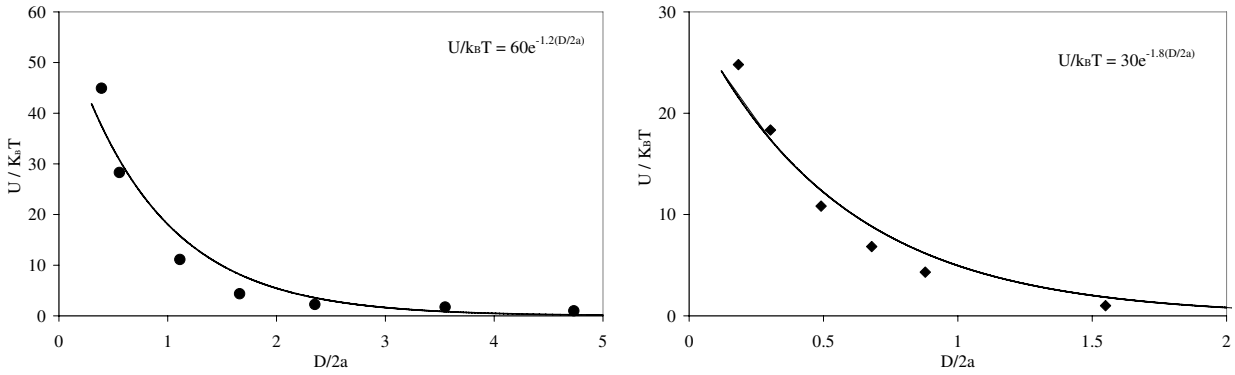


FIG. 2.14: *Comportement de l'énergie moyenne d'interaction entre deux particules avec la distance inter-particulaire D. A guauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane*

2.4.5 Vérification des résultats de la modélisation

Dans le but de vérifier les résultats de la modélisation, nous avons utilisé une relation liant l'élasticité à fort cisaillement G'_∞ à l'énergie d'interaction par paire de particules, proposée par Buscall [49] et utilisée par Baravian [9] :

$$G'_\infty \cong \frac{N^*\phi^*}{5\pi D}\frac{\partial^2 U(D)}{\partial D^2} \tag{2.27}$$

où N^* est le nombre de particules voisines, on considère $N^* \sim 12$ correspondant à une structure compacte. $\phi^* = 0.71$ est la fraction volumique du paking maximum.

Connaissant l'énergie potentielle U [6], l'équation Eq.2.27 permet donc de déterminer l'élasticité,

[6] Nous avons utilisé la courbe en exponentiel ajustée dans la figure Fig.2.14

que nous comparons à l'élasticité obtenue par des mesures indépendantes de fluage en appliquant un échelon de contrainte (nous reviendrons en détails sur les mesures de fluage dans le chapitre 3).

L'élasticité dérivée de l'énergie d'interaction obtenue par la modélisation G'_∞ et celle obtenue par la mesure de fluage G sont représentées sur la figure Fig.2.15, pour les différentes concentrations de Polyacrylamide et de Xanthane. Pour ce dernier, nous comparons avec 3 mesures effectuées sur 3 concentrations. La comparaison montre que l'élasticité G'_∞ calculée par le modèle a un comportement similaire à celui décrit par les mesures réelles de fluage G. Aussi les ordres de grandeurs de ces deux quantités sont très proches pour les différentes concentrations. Ceci permet de dire que la description du modèle de Quemada sur les deux suspensions de Polyacrylamide et de Xanthane, se rapproche de la configuration et du comportement réel de ces deux polymères. A partir d'une description approximative de sphères, nous avons déterminé des valeurs d'élasticité très correctes pour les différentes concentrations i.e. une élasticité prédite par l'écoulement, ce qui est en lui-même un résultat important vu la complexité des interactions existant au sein des solutions polymères et vu leurs conformations.

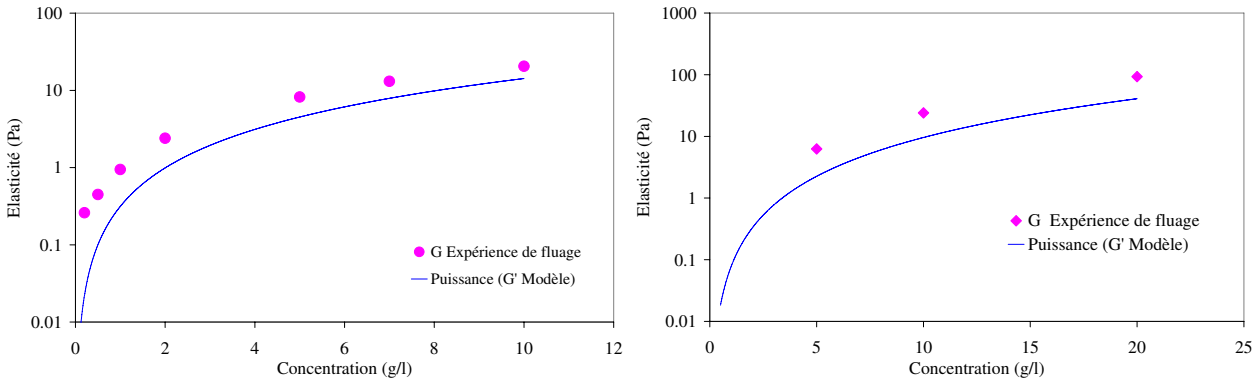


FIG. 2.15: *Comparaison de l'élasticité G'_∞ obtenue par la modélisation et de l'élasticité G obtenue par des mesures de fluage. A gauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane*

2.4.6 Bilan

Dans ce travail, nous avons proposé une approche dimensionnelle simple, en supposant les solutions aqueuses de polymère (Xanthane, Polyacrylamide) comme un milieu dispersé effectif. Cette étude nous a permis de décrire le comportement rhéofluidifiant des solutions étudiées et d'accéder à certains paramètres comme η_∞, σ_c et U par le biais du modèle de Quemada. Ces paramètres, ont été étudiés pour différentes concentrations, ce qui nous a donné des informations sur la structure du matériau, à savoir :

– Nous avons pu décrire parfaitement le comportement de la viscosité stationnaire $\eta_\phi(\sigma)$ avec

les modèle d'Ellis et de Quemada, pour chaque solution,

- A faibles contraintes de cisaillement ($Pe \to 0$), le modèle $\eta_0(\phi)$ ne peut pas décrire le matériau à cause de l'énergie d'interaction prédominante responsable de la formation de structures (méso- ou macroscopiques) dépendante de la fraction volumique (Fig.2.9),
- A fortes contraintes de cisaillement ($Pe \to \infty$), l'énergie mécanique prédominante permet de décrire les solutions comme étant une dispersion de particules individuelles (volume exclu) qui interagissent avec le fluide suspendant du milieu effectif dont la viscosité est proche de celle de l'eau.
- A $Pe \sim 1$, nous avons considéré que l'énergie hydrodynamique est de l'ordre de grandeur de l'énergie d'interaction $W_H = \sigma_c a^3 \approx U$. Ainsi, à faibles concentrations, nous avons déterminé une taille dimensionnelle des particules pour chaque polymère. Nous avons utilisé la contrainte caractéristique σ_c pour calculer l'énergie d'interaction entre deux particules U, et nous avons montré la forte décroissance de U avec la distance relative entre deux particules $D/2a$. Nous avons constaté que l'énergie d'interaction entre particules de Polyacrylamide est plus importante que celle entre particules de Xanthane.
- Nous avons pu valider cette modélisation en comparant l'élasticité G'_∞ obtenue par le modèle à celle mesurée par des expériences de fluage G. L'élasticité prédite par l'écoulement montre que le potentiel d'interaction déterminé U se rapproche des interactions entre les macromolécules suspendues dans les solutions.

Enfin, bien que le modèle de Quemada reste une approximation de nos solutions polymères, l'exploitation des paramètres du modèle nous a permis d'obtenir des résultats cohérents liant des propriétés rhéologiques macroscopiques à des interprétations structurelles. En effet, la notion de milieu effectif nous a permis de décrire un système de particules piégeant une quantité de solvant (volume exclu). Dans le cas des particules anisotrope comme le Xanthane [34, 36], les bâtonnets peuvent se mettre en rotation sur eux-mêmes dans une sphère de rayon a. On peut imaginer alors que, sous cisaillement, les batonnêts (particules anisotropes) peuvent s'orienter dans le sens de l'écoulement, ce qui sera étudié en utilisant des mesures de biréfringence sur des solutions de Xanthane.

2.5 Mesure de biréfringence sur des solutions de Xanthane

Ces mesures ont été effectuées par les étudiants : A-M. Philippe, E. Demangeon, B. Tessier, au cours de leurs stage de maîtrise encadré par C. Baravian et moi-même.

La mesure de biréfringence, découverte vers la fin du XIX^e siècle, fait partie des méthodes op-

tiques développées pour accéder aux caractéristiques microscopiques du matériau. Elle est induite par un champ hydrodynamique dans un fluide, solution ou dispersion contenant des particules optiquement anisotropes ou déformables, et due à une orientation non aléatoire de ces particules. Nous nous proposons de mener cette étude sur le Xanthane, dont les particules sont anisotropes (bâtonnets) et peuvent s'orienter sous cisaillement. L'essentiel de cette étude repose sur les travaux préalables de mesure de biréfringence dans une direction perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde de lumière polarisée [50, 51].

2.5.1 Lumière polarisée

La lumière ordinaire, telle la lumière émise par le soleil ou par une lampe, est créée par des charges électriques qui vibrent dans une variété de directions, elle est donc composée d'ondes électromagnétiques qui vibrent dans toutes les directions dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. Ce type de lumière est désigné sous le nom de lumière non-polarisée. Dans les méthodes spectroscopiques, il s'avère nécessaire d'utiliser une lumière polarisée, c'est-à-dire une lumière dont les ondes électromagnétiques vibrent sur un seul plan (Fig.2.16).

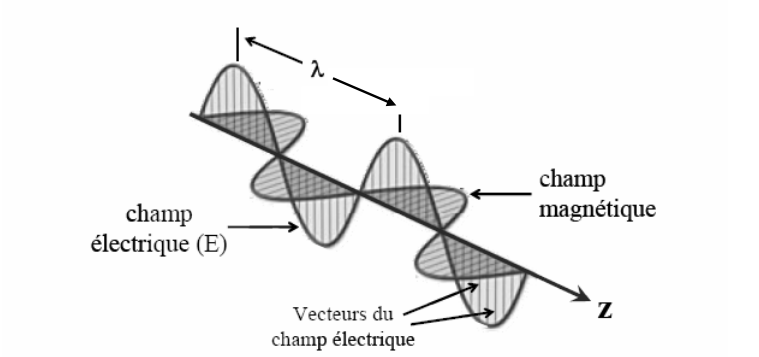


FIG. 2.16: *Propagation d'une onde électromagnétique polarisée*

La polarisation est une propriété spécifique des ondes transversales. Généralement, la lumière polarisée est créée à l'aide d'un filtre polariseur qui est un instrument qui confine la vibration des vecteurs des champs électriques et magnétiques à un seul plan. Son mode d'action est simple et on peut le visualiser comme étant un tamis qui ne laisserait pas passer les ondes qui vibrent à des angles différents de celui du plan de polarisation. Pour comprendre cette notion de lumière polarisée, raisonnons sur le champ électrique, par exemple : ce champ vectoriel possède deux composantes (suivant x et y) qui vibrent dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation de la lumière. Si ces deux quantités vibrent en phase on dit que la polarisation est linéaire. On entend par là que l'extrémité du vecteur champ électrique décrit une ligne dans le plan d'oscillation. Si par contre,

les vibrations des composantes x et y sont déphasées, on parle alors de polarisation elliptique ou circulaire (Fig.2.17).

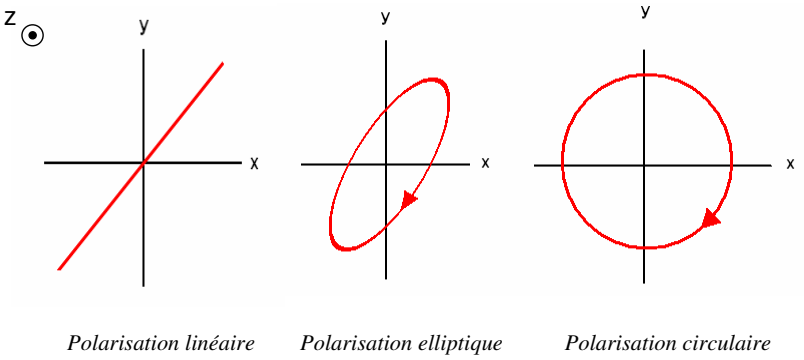


FIG. 2.17: *Polarisation d'une onde électromagnétique*

2.5.2 Notion de biréfringence

De façon générale, la biréfringence d'un milieu peut être générée par une orientation et parfois un allongement des particules dans le sens de l'écoulement (Fig.2.18) ; ce qui rend les particules optiquement anisotropes ; la réfraction de la lumière par ces particules est alors différente avec la direction de propagation de l'onde lumineuse, phénomène connu sous le nom d'*effet Maxwell*. Considérons un échantillon de solution de polymère au repos (dans un états relaxé), où les particules se trouvent dans une conformation aléatoire « randomisée » (position A sur la figure Fig.2.18). L'indice de réfraction est le même dans toutes les directions. Lorsqu'un cisaillement est appliqué, les particules seront étirées (point B et C). A mesure que le cisaillement augmente, les axes longs des polymères s'orientent préférentiellement de plus en plus dans la direction de l'écoulement. Ceci est indiqué par l'angle d'extinction χ, nommé aussi « angle d'orientation » car il indique l'angle d'orientation des particules par rapport à la direction de l'écoulement (Fig.2.18). A de faibles taux de cisaillement, la biréfringence est presque nulle et l'angle d'extinction approche 45°, indiquant que le système est anisotrope et que les particules se trouvent disposées au hasard. Un angle de 0° indique, d'un autre coté, que les particules sont alignées dans le sens de l'écoulement.

Le Xanthane est un matériau constitué de molécules non symétriques orientées aléatoirement par suite de l'agitation thermique brownienne. Sous l'action d'une force hydrodynamique conséquente (i.e une contrainte), ces particules adoptent une orientation moyenne dans la direction de l'écoulement. Pour comprendre comment ces molécules vont réagir aux sollicitations du champ électrique d'une lumière traversant notre matériau, on peut imaginer que les électrons de la substance répondent mieux aux oscillations dans la direction parallèle à l'axe des molécules (appelé aussi axe

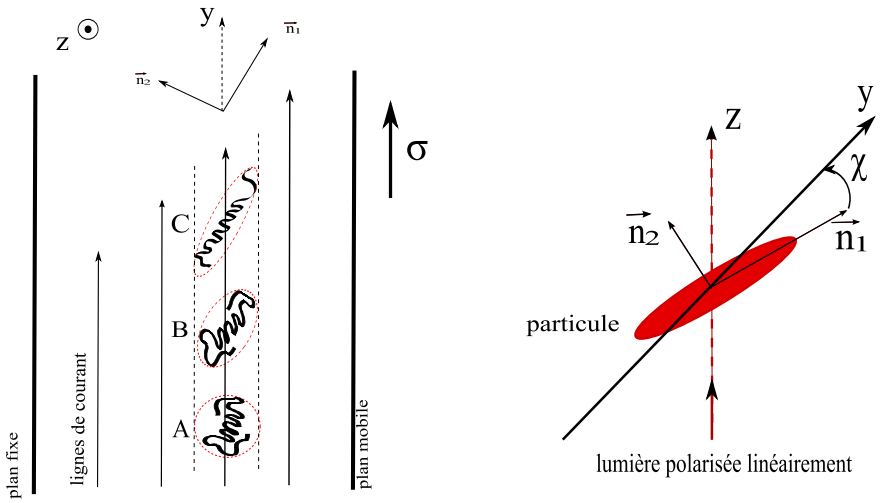


FIG. 2.18: *Anisotopie optique dans un milieu biréfringent*

« optique ») que dans la direction perpendiculaire. De ce fait, si la polarisation est parallèle à l'axe optique, elle va traverser avec une certaine vitesse. Si elle est perpendiculaire, elle traversera avec une vitesse différente. L'indice de réfraction dans la direction de l'axe optique $\vec{n_1}$ sera donc différent de celui dans une direction perpendiculaire $\vec{n_2}$: on dit que la substance est *biréfringente* [52]. Un milieu biréfringent est caractérisé par l'angle d'extinction χ et par l'intensité de biréfringence Δn qui est la différence des deux indices de réfraction n_1 et n_2 respectivement dans les deux directions $\vec{n_1}$ et $\vec{n_2}$ (montré pour le point C).

En fait, les composantes du champ électrique se déplacent à des vitesses différentes. De ce fait, leurs phases changent à des vitesses différentes. La polarisation d'une lumière qui traverse un milieu biréfringent va donc être modifiée tout au long de sa propagation, alternant polarisation linéaire et elliptique (Fig.2.19, [50]).

On peut en déduire que lorsqu'une lumière polarisée traverse un matériau dont les particules sont orientées, sa polarisation est modifiée. Ces modifications sont directement reliées à la quantité d'objets orientés dans le milieu. Ces changements de polarisations se traduisent visuellement par l'observation de noeuds et de ventres d'intensité de la lumière (polarisée linéairement) diffusée dans une direction normale à la direction de propagation. Nous allons ainsi pouvoir caractériser la biréfringence d'une solution de Xanthane soumise à un gradient de vitesse.

2.5.3 Mesure de Biréfringence

Pour mesurer la biréfringence des solutions de Xanthane à 0.5%, 1% et 2% en masse, nous avons utilisé une géométrie de Couette en plexiglas. C'est pour cela que, dans un premier temps, nous avons vérifié que la solution de Xanthane ne présentait pas de glissement de surface sous

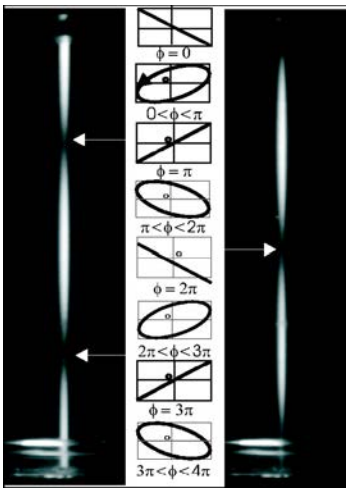


FIG. 2.19: *Evolution de l'état de polarisation en fonction de la distance parcourue dans un milieu biréfringent de solution colloïdale (propagation de haut en bas). La polarisation est linéaire en entrée [50].*

écoulement. La figure Fig.2.20 présente les lois de comportement obtenues, pour une même solution, avec différentes géométries utilisées : cône-plan 60 mm de diamètre 1° ; vane de hauteur effective de 44.73mm et de rayons $R_1 = 20.90mm$ et $R_2 = 12.25mm$; cellule de Couette d'une hauteur de 63 mm, constituée d'un cylindre intérieur mobile de rayon $R_1 = 22mm$ et d'un cylindre extérieur fixe de rayon $R_1 = 24mm$. Toute les mesures ont été éffectuées à température ambiante et avec un rhéomètre $AR1000$. Les mesures donnent une bonne reproductibilité de la loi rhéologique, sur six décades de cisaillement, avec les différentes géométries utilisées. Nous pouvons estimer qu'il n'y a pas de glissement sur les parois de la cellule de Couette utilisée pour la mesure de biréfringence.

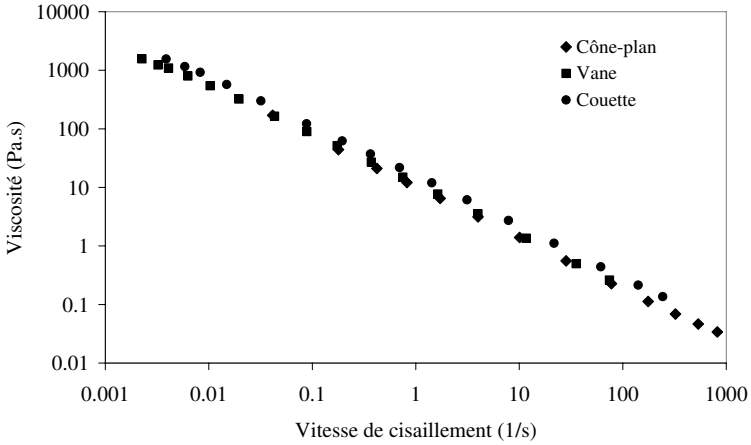


FIG. 2.20: *Rhéologie de la solution de xanthane* 1%

Nous avons utilisé la technique développée récemment par J.P. Decruppe [50]. Un faisceau laser polarisé linéairement est collimaté dans l'entrefer d'un Couette transparent (le faisceau de la diode laser Hélium-Néon de longueur d'onde $635nm$ passe par un polariseur linéaire avant de traverser la solution de Xanthane). La cellule de Couette d'une hauteur de 63 mm est constituée d'un cylindre intérieur mobile ($R_1 = 22mm$) et d'un cylindre extérieur fixe ($R_1 = 24mm$). Nous observons la propagation du faisceau laser dans l'entrefer avec une caméra orientée à 45° par rapport à l'axe de polarisation initiale du faisceau (Fig.2.21). Nous visualisons alors des modulations d'intensité le long du faisceau. La distance entre deux noeuds correspond alors à un déphasage de 2π de la lumière.

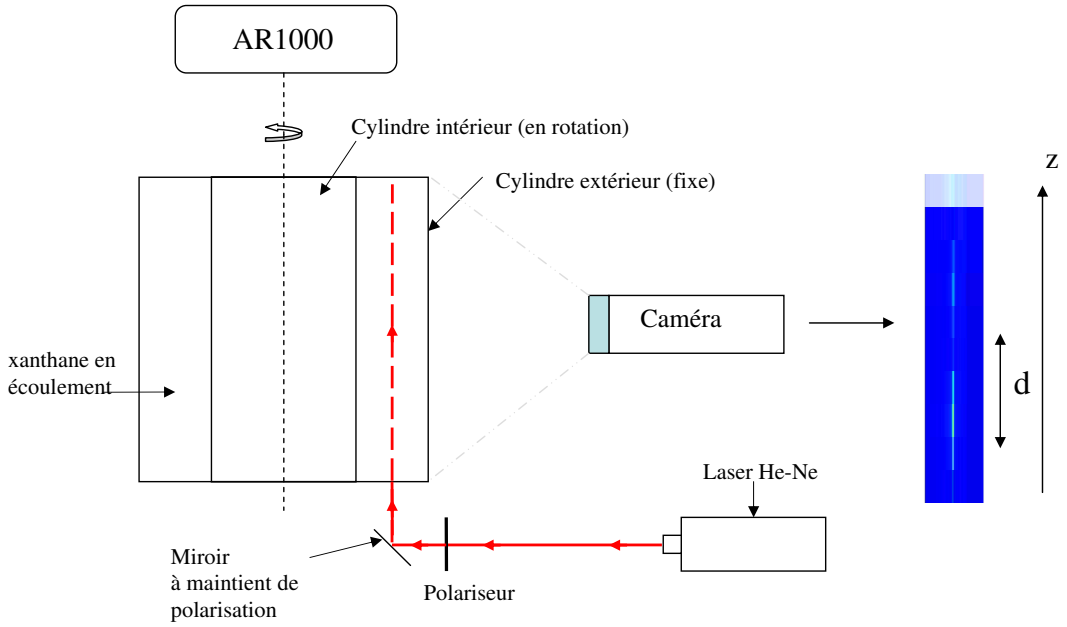


FIG. 2.21: *Dispositif expérimental pour la mesure de la biréfringence des solutions de Xanthane*

La figure Fig.2.22 confirme la présence d'objets orientés qui fait tourner la polarisation du faisceau laser, ce qui confirme le caractère biréfringent des solutions de Xanthane. Nous observons une augmentation du nombre de noeuds (ventres) pour les forts cisaillements pour la même solution. En effet, plus il y aura une grande proportion de particules orientées dans le milieu, plus la polarisation subira de modifications le long de sa propagation, donc plus on observera de noeuds et de ventres. Ainsi, la période spatiale d diminue à mesure que le cisaillement augmente.

Pour chaque solution de Xanthane étudiée (0.5%, 1% et 2%), nous avons extrait l'intensité (arbitraire) le long du faisceau. L'évolution de l'intensité présente deux caractéristiques principales que nous modélisons par une loi de Beer-Lambert (Eq.2.28). Tout d'abord l'allure sinusoïdale dont

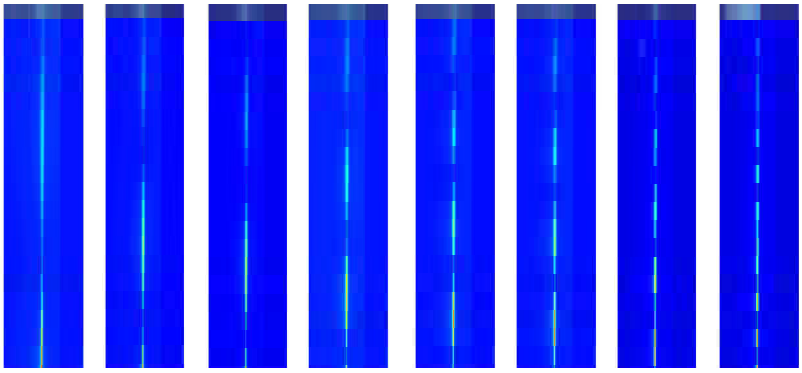


FIG. 2.22: *Biréfringence de la solution de Xanthane 1% pour différents cisaillements. De gauche à droite :* $0.01s^{-1}$, $0.05s^{-1}$, $0.1s^{-1}$, $0.5s^{-1}$, $5s^{-1}$, $10s^{-1}$, $100s^{-1}$ *et* $900s^{-1}$

on a rendu compte par la modulation en cosinus ; on a ainsi pu introduire dans le modèle une grandeur importante pour notre étude, la période spatiale d représentant la distance entre deux noeuds (ou deux ventres) consécutifs. D'autre part les oscillations sont amorties au cours de la propagation. Ce comportement relatif aux événements de dispersion dans le milieu a été traduit mathématiquement par une décroissance exponentielle dont la longueur caractéristique l_s représente la longueur spécifique de la solution étudiée (Fig.2.23).

$$I(z) \propto exp^{-\frac{z}{l_s}} \left\{ 1 + D.cos\left(\frac{2\pi z}{d} + F\right)\right\} \tag{2.28}$$

où D et F sont des paramètres d'ajustement, z est la distance parcourue par le faisceau laser, et d est la distance séparant deux noeuds (ou deux ventres) successifs.

Discussion

Le modèle est ajusté avec une méthode de moindres carrés. La figure Fig.2.23 montre quelques exemples d'ajustement. Les graphes présentés traduisent les figures d'interférence pour différents cisaillement appliqués aux solutions de Xanthane. Il est cependant intéressant de comparer les figures d'interférences obtenues pour des gradients de vitesses identiques mais avec des solutions de concentrations différentes. C'est le cas du Xanthane 0.5% et 2%. Le nombre de ventres et de noeuds pour chaque gradient de vitesse $1s^{-1}$, $100s^{-1}$ et $500s^{-1}$ est plus important dans la solution la plus concentrée (Xanthane 2%). Cela s'explique par le fait que l'augmentation de la concentration implique une augmentation du nombre de particules orientées dans le milieu de propagation. Pour une concentration données, la polarisation tourne plus vite que pour une concentration inférieure, car la lumière rencontre plus d'objets orientés dans son parcours.

L'ajustement de l'équation Eq.2.28 sur les différentes courbes nous a permis de déterminer une

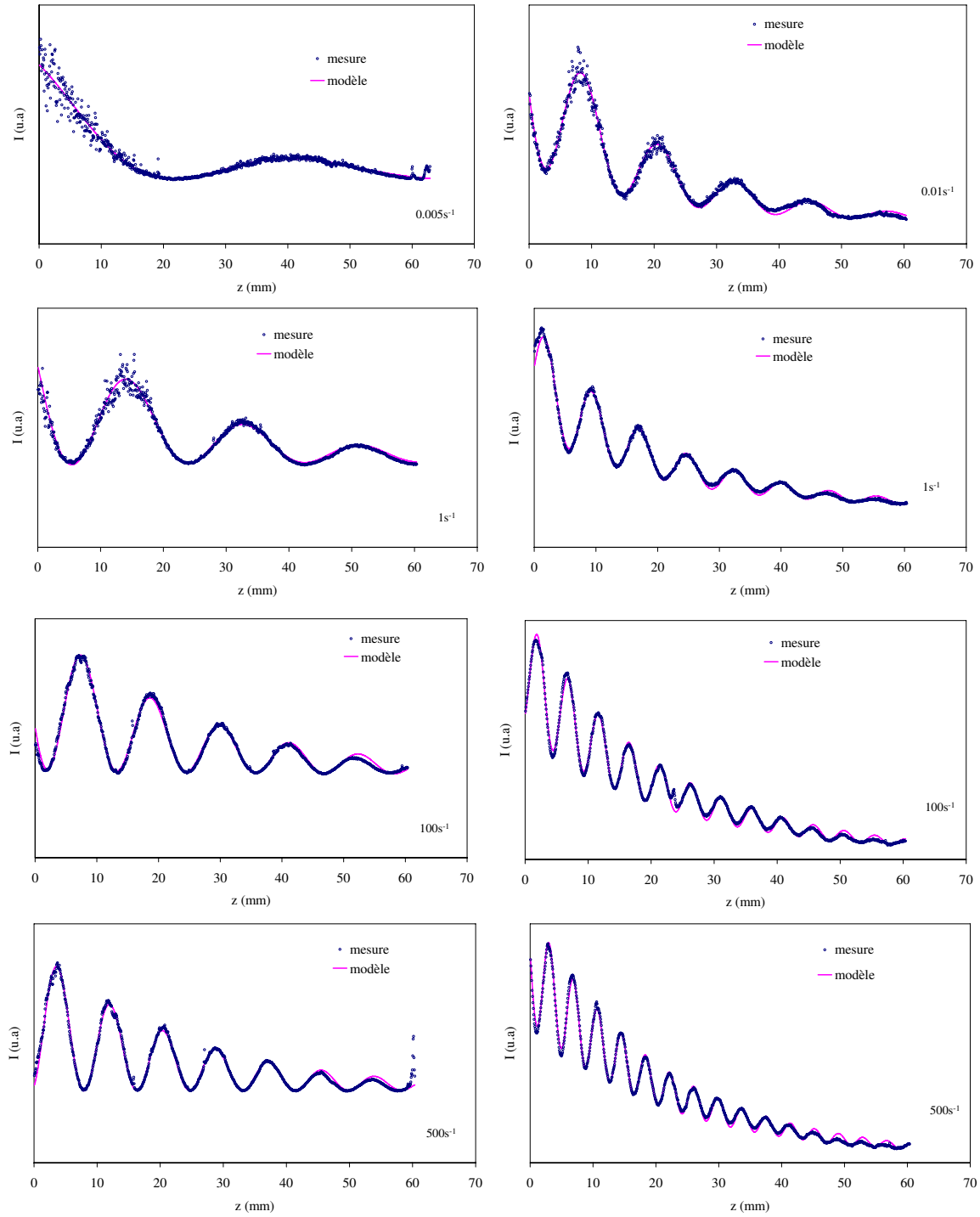


FIG. 2.23: *Décroissance et oscillations d'intensité de la solution sous cisaillement. A gauche : Xanthane* 0.5% *(*$0.005s^{-1}$, $1s^{-1}$, $100s^{-1}$ *et* $500s^{-1}$*). A droite : Xanthane* 2% *(*$0.01s^{-1}$, $1s^{-1}$, $100s^{-1}$ *et* $500s^{-1}$*)*

longueur spécifique constante pour chaque solution de Xanthane. Il s'agit de la distance moyenne entre deux événements successifs de dispersion l_s. Elle est liée à la concentration numérique φ en particules dans le milieu et à la section efficace ζ des particules $< l_s >= 1/\varphi\zeta$. Ce qui est cohérent

avec les mesures de l_s données dans le tableau Tab.2.2.

Concentration	0.5%	1%	2%
$< l_s >$	$50mm$	$24mm$	$12mm$

TAB. 2.2: *Détermination des longueurs spécifiques des solutions de Xanthane.*

En effet, une concentration définie le nombre d'objets (particules) dans le milieu, donc la probabilité pour qu'un photon traversant ce milieu rencontre un objet. C'est pour cela que plus la concentration est grande (plus de particules), moins la longueur de dispersion l_s est grande.

2.5.4 Evaluation de la biréfringence : loi tensio-optique

La mesure de biréfringence permet d'avoir une vision globale des propriétés microscopiques du milieu, à savoir l'orientation ou la déformation des particules dans le milieu. L'intensité de la biréfringence Δn est liée aux contraintes mécaniques qui induisent l'anisotropie du milieu. Elle est liée à la période spatiale d (obtenue par l'ajustement de l'équation Eq.2.28) par la relation Eq.2.29 [50]. Connaissant la période spatiale d, nous pouvons donc déterminer l'intensité de la biréfringence Δn induite par le cisaillement :

$$\Delta n = \frac{\lambda / n_{eau}}{2\pi d} \tag{2.29}$$

où λ est la longueur d'onde du laser égale à $635nm$, $n_{eau} = 1.33$ l'indice de réfraction de l'eau, d est la distance entre deux noeuds ou deux ventres.

La figure Fig.2.24 représente l'intensité de la biréfringence mesurée à chaque contrainte de cisaillement et pour les trois solutions de Xanthane (0.5%, 1% et 2%). Même si l'orientation de la polarisation d'entrée n'est pas identique pour chaque concentration, nous constatons que le nombre de noeuds et de ventres est le même d'une concentration à l'autre pour une même contrainte (à $8Pa$ et $20Pa$ par exemple (Fig.2.24)). Les erreurs de mesures sont de l'ordre de la taille des points représentés. En effet, la précision de la mesure est garantie par les différentes courbes (Fig.2.23) à partir desquelles, nous avons détérminé la distance d. La courbe obtenue décrit une pente égales à 1 pour des contraintes supérieurs à $10Pa$. En dessous, cette pente varie notamment pour des contraintes entre 1 et 2 Pa ou des intéractions de structure apparaissent conduisant à une orientation partielle des particules de Xanthane.

La figure Fig.2.24 montre que la biréfringence ne dépend pas de la concentration des particules dans le milieu mais uniquement de la contrainte appliquée. Il s'agit de la loi tensio-optique qui établit un lien entre la rhéologie et la biréfringence. D'après Decruppe, elle est établie dans le

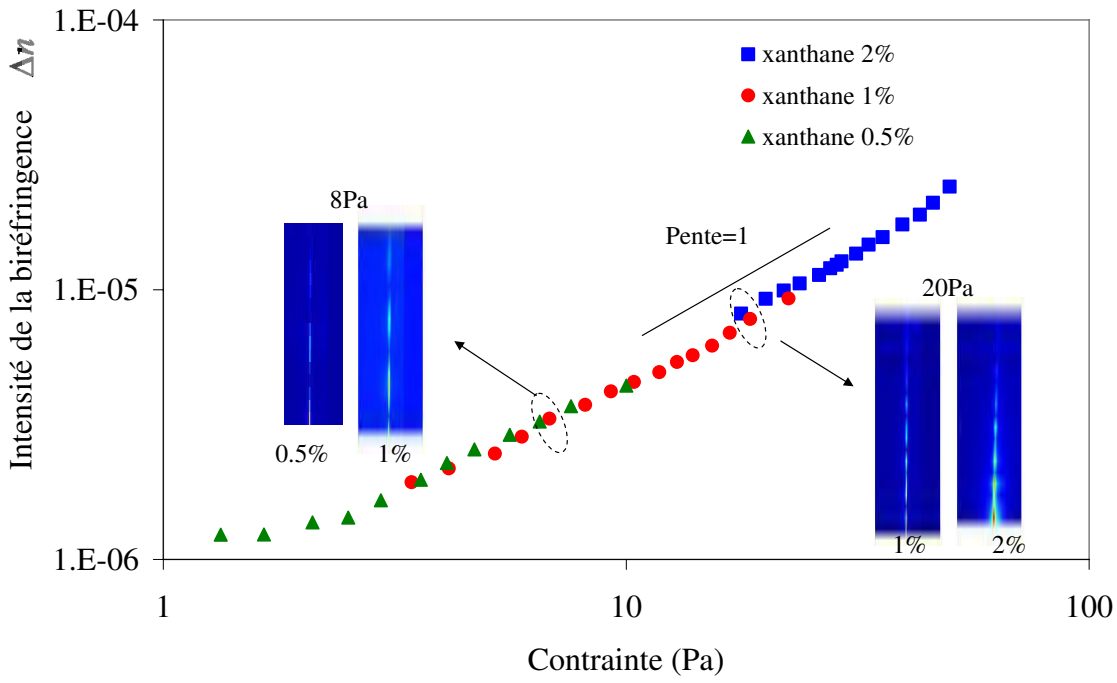


FIG. 2.24: *Biréfringence des solution de Xanthane* 0.5%, 1% *et* 2% *en fonction de la contrainte appliquée. Loi tensio-optique*

cadre de l'élasticité caoutchoutique [53]. Sa formulation générale établit une relation linéaire entre le tenseur des contraintes et le tenseur des indices de réfraction.

2.5.5 Bilan

Nous avons déterminé la biréfringence à partir de la propagation de la lumière dans un milieu rendu optiquement anisotrope par le cisaillement. Cette méthode nous a permis d'obtenir une mesure précise et objective de la biréfringence.

Nous avons pu obtenir la loi tensio-optique qui lie la contrainte de cisaillement aux propriétés optiques liées à l'orientation des particules dans la solution. En effet, sous certaines conditions, la biréfringence contribue à l'étude et à l'interprétation du comportement mécanique décrit par la rhéologie, elle permet d'apporter des informations sur la structure des particules en solution, comme c'est le cas des solutions de Xanthane, où les particules anisotropes s'orientent sous l'effet du cisaillement. Ainsi, nous avons montré que l'orientation des particules est proportionnelle à la contrainte de cisaillement.

2.6 Conclusion

L'étude de la viscosité stationnaire sous écoulement de différentes solutions de polymères, nous a permis de donner une description globale du comportement des objets (particules) constituant le matériau.

Tout d'abord, à forts cisaillements, l'utilisation d'un modèle structurel a été efficace pour obtenir des informations sur la structure du matériau à savoir l'ordre de grandeur de la taille hydrodynamique des particules et l'énergie d'interaction. Par conséquent, nous avons déterminé l'élasticité G' prédite par l'écoulement.

Ensuite, la mesure de biréfringence nous a permis d'obtenir une vision globale sur la conformation et l'orientation des objets sous écoulement cisaillé. A travers la loi tensio-optique, nous avons montré que le comportement des objets des matériaux, ne dépend que de la contrainte appliquée. L'intérêt de ce résultat peut se manifester dans le domaine des écoulements hétérogènes où la biréfringence permet de mettre en évidence, de manière simple et sans ambiguïté, la présence et l'émergence des bandes de cisaillement, ou encore dans les écoulements dans des géométries complexes pour déterminer, de manière précise, le champs de contrainte dans le fluide.

Chapitre 3

Rhéométrie instationnaire : Méthodes de caractérisation. Fluage et Oscillations

Le comportement instationnaire des fluides complexes, comme la thixotropie et la viscoélasticité est d'une importance fondamentale dans un grand nombres de processus industriels. Le caractère viscoélastique est un comportement très présent dans les solutions de polymères et dans les polymères fondus. La mesure des paramètres viscoélastiques avec un rhéomètre à contrainte imposée, engendre un effet d'inertie, qui doit être étroitement analysé afin de déterminer les véritables propriétés matérielles. Cet effet constitue d'une part une limitation expérimentale et peut, d'une part, s'avérer utile à la caractérisation du matériau.

Ce chapitre a pour but d'étudier le couplage entre l'inertie de l'appareil et les propriétés viscoélastiques des gels faibles, dans le cas du fluage (contrainte fixe appliquée) et dans celui des oscillations forcées (contrainte appliquée oscillante). Nous avons utilisé une approche analytique pour analyser les données brutes des expériences et avons pu ainsi comparer les deux méthodes de caractérisation.

Sommaire

3.1 Inertie **71**

3.2 Approche analytique **72**

3.3 Dispositif et méthodes expérimentales **74**

3.4 Résultats expérimentaux **77**

3.5 Oscillations autour d'une contrainte non nulle 0.3Pa **83**

3.6 Conclusion **84**

3.1 Inertie

Dans les rhéomètres à contrainte imposée, les effets d'inertie ont été d'abord étudiés par Krieger [25]. L'équation du mouvement de la partie mobile du rhéomètre est données par :

$$I \cdot \frac{\partial^2 d_\theta}{\partial t^2} = \Gamma_{\text{appliqué}} - \Gamma_{\text{subi}} \tag{3.1}$$

où I est le moment d'inertie de la partie mobile, d_θ est le déplacement angulaire de la partie mobile, Γ_{app} et Γ_{sub} désignent respectivement les couples appliqué et subi : par couple appliqué, nous entendons la commande de couple transmise par le moteur ; par couple subi, celui réellement présent sur l'axe de rotation du rhéomètre, donc celui réellement subi par le matériau.

Dans le cas du comportement linéaire d'un matériau homogène, la contrainte de cisaillement σ est proportionnelle au couple Γ via le facteur de contrainte F_σ : $\sigma = F_\sigma \Gamma$. Il en va de même pour le gradient de vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ et la vitesse angulaire Ω (ou la déformation γ et le déplacement angulaire d_θ) via le facteur de gradient F_γ : $\dot{\gamma} = F_\gamma \Omega$ et $\gamma = F_\gamma d_\theta$. L'équation Eq.3.1 s'écrit alors :

$$\alpha \cdot \frac{\partial^2 \gamma}{\partial t^2} = \sigma_{app} - \sigma_{sub} \tag{3.2}$$

où :

σ_{app} : la contrainte appliquée.

σ_{sub} : la contrainte subie par le matériau.

$\alpha = I\frac{F_\sigma}{F_\gamma}$: paramètre d'inertie, c'est le coefficient pertinent pour évaluer l'influence du temps caractéristique associé aux effets d'inertie de l'appareil.

L'équation Eq.3.2 montre que la contrainte appliquée (connue) est, en général, différente de la contrainte subie (inconnue) lorsque les effets d'inertie sont impliqués. Le problème est donc de connaître la contrainte subie réellement par le matériau. On peut évaluer cette contrainte [25] en exécutant soit une dérivation du premier ordre de la vitesse angulaire mesurée $\alpha\frac{\partial \Omega}{\partial t} = \Gamma_{app} - \Gamma_{sub}$, soit une dérivation du second ordre de l'écart angulaire acquis par une évaluation du couple subi, dans l'équation Eq.3.1. C'est naturellement difficile, même sur les appareils modernes suffisemment précis, car cette évaluation dépend de la précision angulaire absolue et du taux d'acquisition.

Le temps caractéristique correspondant aux effets d' **inertie d'appareil** peut être estimé par l'équation Eq.3.2. La contrainte subie étant remplacée par $\sigma_{sub} = \eta\dot{\gamma}$ (cas d'un fluide newtonien) en réponse à un échelon de contrainte d'amplitude σ_{app}, la variation temporelle de la contrainte subie est donnée par $\sigma_{sub} = \sigma_{app}\left(1 - e^{-\frac{\eta}{\alpha}t}\right)$. Nous voyons clairement que le temps caractéristique associé à l'inertie de l'appareil pour un fluide est $t_{inertie} \approx \alpha/\eta$ [27, 28].

Pour les fluides, un autre effet perturbateur peut se produire, lié à l'établissement du champ d'écoulement dans l'échantillon étudié. Ceci est connu en tant qu' **inertie du fluide**, laquelle peut

être évaluée par le temps de diffusion de vorticité (quantité de mouvement) $t_{diff} \approx \rho e^2/\eta$ où : ρ est la densité, η sa viscosité dynamique et e l'entrefer de la géométrie utilisée.

Le rapport des temps caractéristiques d'inertie du fluide et d'inertie d'appareil est indépendant de la viscosité du matériau testé et vaut $\rho e^2/\alpha$. Pour un entrefer de mesure de l'ordre du millimètre, une densité de $1000 kg/m^3$et une valeur (minimale) de α de l'ordre de $0.01 Pa.s^2$, ce rapport des temps vaut environ 0.1. Ceci indique que le temps de relaxation des effets d'**inertie du fluide** est au moins d'un ordre de grandeur plus petit que le temps de relaxation des effets d'**inertie d'appareillage**. Néanmoins, l'effet de l'inertie du fluide demeure une limitation instrumentale qui peut être mis en évidence dans la géométrie coaxiale de Couette [54, 55] ainsi que dans les expériences d'oscillations [56, 57]. Les effets d'inertie en rhéomètrie contrôlée en vitesse mènent également à un régime transitoire, qui ne peut pas être modélisé facilement, puisqu'il est étroitement lié à la boucle de rétroaction du dispositif électronique [58].

3.2 Approche analytique

Il est possible de développer une approche analytique du couplage entre la loi de comportement du matériau et l'équation du mouvement (liée à l'inertie du dispositif expérimental). Pour un modèle de Maxwell-Jeffrey (Fig.3.1), cette équation constitutive est donnée par :

$$\eta_0 G_1 \dot{\gamma} + \eta_1 \eta_0 \ddot{\gamma} = (\eta_1 + \eta_0)\, \dot{\sigma} + G_1 \sigma \tag{3.3}$$

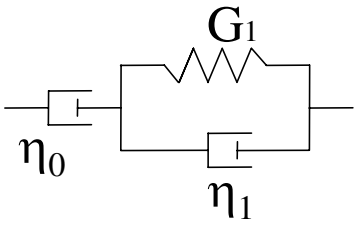


FIG. 3.1: *Schéma analogique du modèle de Maxwell-Jeffrey*

où la contrainte de cisaillement σ est la contrainte subie par le matériau.

En utilisant l'équation Eq.3.2 et Eq.3.3, on trouve :

$$\underbrace{\alpha\left[(\eta_1 + \eta_0) + G_1 \ddot{\gamma}\right]}_{inertie} + \eta_0 G_1 \dot{\gamma} + \eta_1 \eta_0 \ddot{\gamma} = (\eta_1 + \eta_0)\, \dot{\sigma}_{app} + G_1 \sigma_{app} \tag{3.4}$$

L'équation Eq.3.4 comporte les termes d'inertie de l'appareil ainsi que les constantes viscoélastiques. Elle constitue l'équation du mouvement généralisée : une fois la contrainte appliquée est choisie selon l'expérience que l'on veut effectuer (fluage ou oscillations), on peut déterminer la solution

analytique de l'équation Eq.3.4 associée. La résolution de cette équation se fait par l'intermédiaire de la Transformée de Laplace Inverse.

Dans la suite, nous étudierons les deux cas idéal et réel : nous entendons par idéal, le cas où nous négligeons les effets d'inertie (la contrainte appliquée est égale à la contrainte subie (Eq.3.3)) ; nous entendons par réel, le cas où nous considérons les effets d'inertie (la contrainte subie est différente de la contrainte appliquée (Eq.3.4)).

3.2.1 Fluage

La mise en évidence du fluage est obtenue en appliquant un échelon de contrainte, donné par :

$$\sigma_{app}(t) = \sigma_0 H(t) \tag{3.5}$$

où σ_0 désigne l'amplitude de l'échelon de contrainte et $H(t)$ la fonction Heaviside.

3.2.1.1 Modèle sans inertie

La résolution de l'équation Eq.3.3 avec l'équation Eq.3.5 sans inertie donne la fonction de fluage $J = \frac{\gamma}{\sigma_0}$:

$$J(t) = \frac{t}{\eta_0} + \frac{1}{G_1}\left[1 - e^{\frac{G_1}{\eta_1}t}\right] \tag{3.6}$$

3.2.1.2 Modèle avec inertie

La résolution de l'équation Eq.3.4 avec l'équation Eq.3.5 donne :

$$J(t) = \frac{t}{\eta_0} - A + e^{-\lambda t}\left[Acos(wt) + \frac{\lambda}{w}\left(A - \frac{1}{\lambda\eta_0}\right)sin(wt)\right] \tag{3.7}$$

Avec $A = \frac{\alpha(\eta_1+\eta_0)}{\eta_0 G_1}\left(\frac{2\lambda}{\eta_0} - \frac{1}{\alpha}\right)$, $\lambda = \frac{\alpha G_1 + \eta_1\eta_0}{2\alpha(\eta_1+\eta_0)}$ et $w = \sqrt{\frac{\eta_0 G_1}{\alpha(\eta_1+\eta_0)} - \lambda^2}$ pour $G_1 \geq \frac{2\eta_0^2}{\alpha}\left(1 + \frac{\eta_1}{2\eta_0} + \sqrt{1 + \frac{\eta_1}{\eta_0}}\right)$.

Pour des temps plus grands que le temps caractéristique viscoélastique $1/\lambda$, l'élasticité retardée de la forme $\sum_{i>1}\frac{1}{G_i}e^{\frac{G_i}{\eta_i}t}$ peut être ajoutée pour ajuster le modèle en utilisant le principe de superposition de Boltzmann $(1/\lambda \ll \eta_i/G_i)$ [1].

Nous constatons l'apparition d'une fréquence d'oscillation H_C qu'on peut estimer comme : $H_C = \frac{w}{2\pi} \cong \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{G_1}{\alpha}}$, avec généralement $\eta_0 >> \eta_1$ et $G_1/\alpha >> \lambda$. Donc $\lambda \cong \frac{\eta_1}{2\alpha}$.

[1] Un matériau satisfait au principe de superposition de Boltzmann si, soumis à une contrainte $\sigma = \sum_i \sigma_i$, il subit une déformation $\gamma = \sum_i \gamma_i$ égale à la somme des déformations γ_i qu'il subirait s'il était soumis isolément à la contrainte τ_i [3]

3.2.2 Oscillations forcées autour d'une contrainte nulle

Pour les oscillations forcées (autour d'une contrainte nulle) la contrainte appliquée est donnée par :

$$\sigma_{app}(t) = \sigma_0 sin(2\pi H_0 t) \tag{3.8}$$

où σ_0 est l'amplitude de la contrainte oscillante et H_0 est la fréquence appliquée.

3.2.2.1 Modèle sans inertie

Nous remplaçons l'expression de la contrainte oscillante autour d'une valeur nulle dans l'équation Eq.3.4, nous résolvons l'équation du mouvement sans inertie. Pour un modèle de Maxwell-Jeffrey, la solution est donnée par :

$$\gamma(t)_{sans-inertie} = \sigma_0\omega_0 \left\{ \frac{A_0}{\omega_0} sin(w_0 t) - \frac{B_0}{w_0^2}(1 - cos(w_0 t)) - \frac{A_0\eta_1}{G_1}\left[1 - e^{\frac{-G_1}{\eta_1}t}\right]\right\} \tag{3.9}$$

3.2.2.2 Modèle avec inertie

Nous remplaçons l'expression de la contrainte oscillante (Eq.3.8) autour d'une valeur nulle, dans l'équation Eq.3.4. Nous résolvons l'équation du mouvement avec inertie pour un modèle de Maxwell-Jeffrey. La solution est donnée par :

$$\begin{aligned}\gamma(t) = \frac{\sigma_0\omega_0}{\alpha}\Bigg\{ &\frac{A_0}{\omega_0} sin(w_0 t) - \frac{B_0}{w_0^2} cos(w_0 t) \\ &- \frac{e^{-\lambda t}}{\lambda^2 + w^2}\left[C_0 cos(wt) + D_0 sin(wt) + \frac{B_0}{w_0^2} + \frac{C_0}{\lambda^2 + w^2}\right]\Bigg\}\end{aligned} \tag{3.10}$$

Avec $A_0 = \frac{\lambda_0 + w^2 - w_0^2 - \frac{2\lambda G_1}{\eta_1+\eta_0}}{(\lambda^2+w^2-w_0^2)^2+4\lambda^2 w_0^2}$, $B_0 = \frac{\frac{G_1}{\eta_1+\eta_0}+2\lambda^2 A_0}{\lambda^2+w^2-w_0^2}$, $C_0 = -2\lambda A_0 - B_0$, $D_0 = \frac{C_0\lambda + A_0(\lambda^2+w^2)}{w}$ et $w_0 = 2\pi H_0$.

Les paramètres λ et w sont définis dans Eq.3.7.

Comme attendu, la solution obtenue fait apparaître deux pulsations : la pulsation d'excitation w_0 et la pulsation propre w due à la fréquence de couplage.

3.3 Dispositif et méthodes expérimentales

3.3.1 Matériau utilisé

Il s'agit du *Carbopol*940 (fourni par BF Goodrich) en poudre, mélangé avec de l'eau à 0.075% en masse. On incorpore petit à petit la poudre de Carbopol 940 dans de l'eau en mélangeant pendant 30 minutes ; on obtient une solution homogène à laquelle on ajoute de la soude (NaOH) jusqu'à obtention d'un PH neutre (environ 7). Nous avons utilisé un mélangeur pour toute l'opération de

préparation. Les solutions ont été mises au repos pendant quelques jours dans le but d'atteindre un état d'équilibre, avant de procéder à la mesure.

3.3.2 Appareil de mesure

Nous avons utilisé le rhéomètre AR2000 (TA instrument (Fig.3.2)), un appareil de mesure qui fonctionne en contrainte imposée. Le rhéomètre peut effectuer des mesures en mode fluage ou encore en mode oscillatoire, avec la possibilité de contrôler la fréquence et l'amplitude des oscillations forcées.

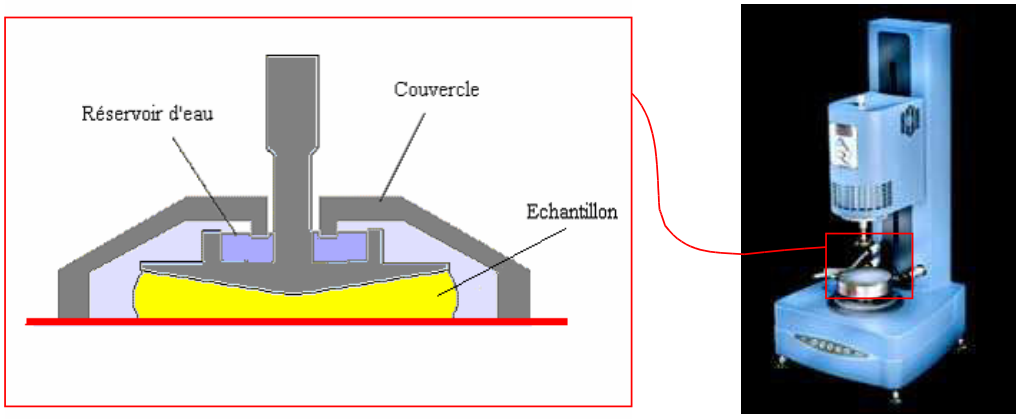


FIG. 3.2: *Rhéomètre AR2000 et géométrie de mesure Cône-plan*

L'appareil est muni d'un système à effet Peltier qui permet un contrôle de température ; nous avons fixé celle-ci à $20°C$ pour toutes les expériences. De plus, le rhéomètre est équipé d'un dispositif destiné à empêcher l'évaporation des matériaux volatils. Il s'agit d'un système de piège à solvant qui permet de saturer l'environnement de l'échantillon par la vapeur d'eau.

Les expériences sont effectuées avec une géométrie cône-plan en acier sur le AR2000. Les caractéristiques de l'ensemble sont données dans le tableau Tab.3.1. Ainsi l'inertie α de l'ensemble de l'outil de mesure vaut $0.02 Pa.s^2$.

3.3.3 Procédures

Nous utilisons le protocole suivant [2] :

1. Précisaillement ($5\ min$) : couple appliqué $5000 \mu Nm$;
2. Repos ($5\ min$) : contrainte nulle ;

[2]Les deux premières étapes de la procédure sont nécessaires pour avoir un même état initial structurel du fluide pour toutes les expériences, c'est l'état de référence.

X	$[X]$	Valeur de X
F_γ	1	28.64
F_σ	$1/m^3$	17680
I	$\mu.N.m.s^2$	34.52
D	mm	60
gap	μm	59

TAB. 3.1: *Caractéristiques de la géométrie utilisée.*

3. – **Fluage** : échelon de contrainte (1 min) : amplitude de la contrainte appliquée $0.1Pa$ (Fig.3.3).
   – **Oscillations autour d'une contrainte nulle** ($1min$) : d'amplitude $0.1Pa$ et de fréquence H_0 allant de 1 à $100Hz$ (Fig.3.4).
   – **Oscillations autour d'une contrainte moyenne** $0.3Pa$ ($1min$) : d'amplitude $0.1Pa$ et de fréquence H_0 allant de 1 à $100Hz$ (Fig.3.5).

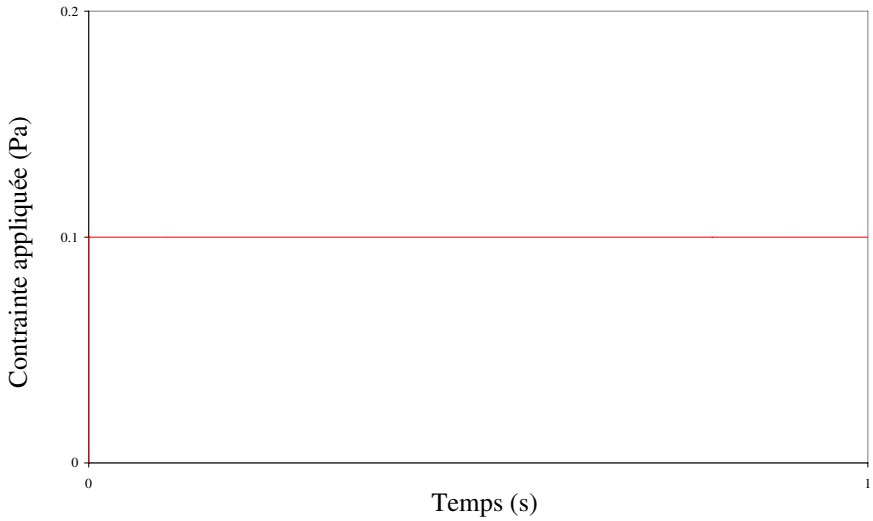


FIG. 3.3: *Procédure de l'expérience de fluage*

Pour les procédures d'oscillations, nous avons utilisé le « torque table »c'est un logiciel pour lequel nous introduisons la contrainte oscillante (en pascal) sous forme de table pour ensuite obtenir la réponse en déformation (sans unité), elle aussi sous forme de table. Les valeurs de la réponse en déformation sont des valeurs brutes qui ne sont pas analysées par le rhéomètre.

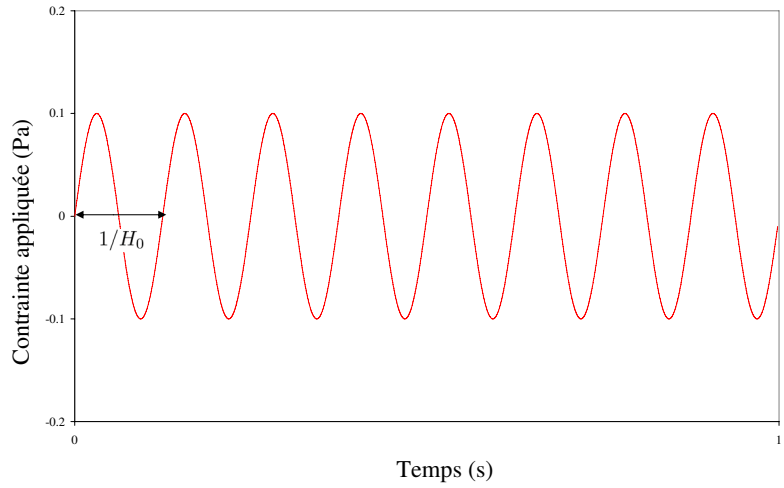


FIG. 3.4: *Procédure de l'expérience d'oscillation autour de* $0Pa$

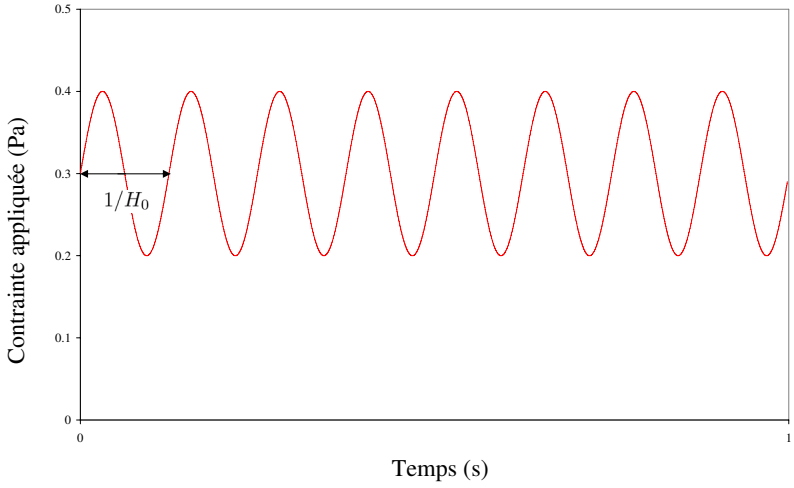


FIG. 3.5: *Procédure de l'expérience d'oscillation autour de* $0.3Pa$

3.4 Résultats expérimentaux

3.4.1 Fluage

La figure Fig.3.6 représente la réponse en déformation suite à l'expérience de fluage décrite précédemment. Le modèle de Maxwell-Jeffrey (avec et sans inertie) est ajusté aux données expérimentales.

On vérifie bien qu'en appliquant un échelon de contrainte, les effets d'inertie mènent aux oscillations libres [26, 59], quand la dissipation des effets élastiques est suffisamment petite. Pour un modèle analogique donné, ces oscillations caractérisent les propriétés viscoélastiques du matériau [28] (Fig.3.6).

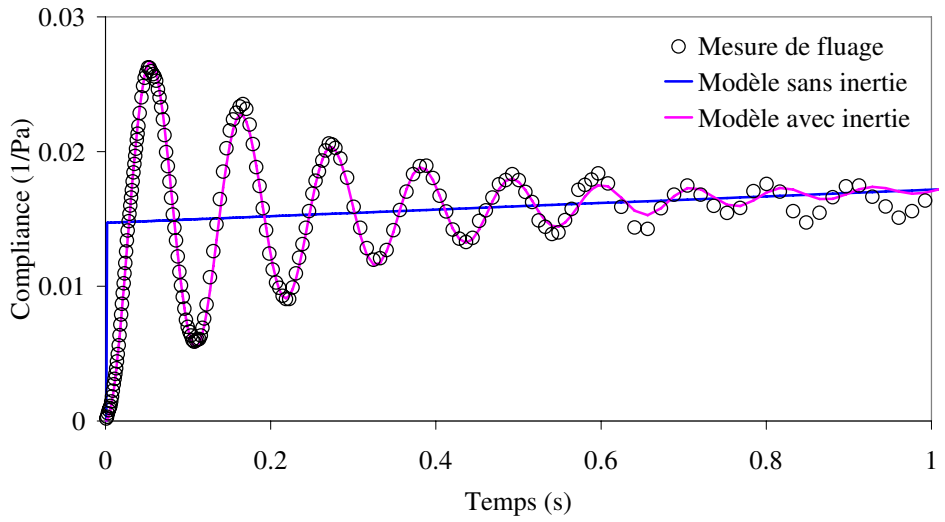


FIG. 3.6: *Réponse en déformation à un échelon de contrainte de* $0.1Pa$ *d'amplitude*

Nous constatons que l'inertie peut en effet être utilisée pour mesurer plus précisément les propriétés viscoélastiques de l'échantillon étudié : l'ajustement de l'équation Eq.3.7 avec les données expérimentales donne : $G_1 = 68Pa$, $\eta_1 = 0.16Pa.s$ et $\eta_0 = 400Pa.s$. Pour le matériau utilisé, la fréquence d'oscillation est d'environ $8Hz$.

L'expérience précédante constitue une analogie mécanique simple de l'effet du couplage inertiel pour des expériences de fluage : une masse fixée à l'extrémité d'un ressort est lâchée à l'origine des temps, la réponse du système masse-ressort serait alors une série d'oscillation s'amortissant de plus en plus avec le temps. Quant au lieu d'une expérience de fluage, on applique des oscillations forcées sur ce système, le phénomène de résonance apparaît lorsque la fréquence appliquée H_0 est proche de la fréquence de couplage H_C. Ce phénomène mène à une « divergence » de l'amplitude de la déformation pour un ressort idéal linéaire.

3.4.2 Oscillations

La figure Fig.3.7 représente les déformations correspondantes à différentes fréquences d'excitation inférieure, voisine et supérieure à la fréquence de résonance, où les courbes expérimentales sont ajustées avec un modèle de Maxwell-Jeffrey. Naturellement, pour chaque expérience, les mêmes paramètres du modèle sont employés pour calculer la réponse matérielle correspondant à un rhéomètre idéal (sans inertie).

Nous constatons sur la figure Fig.3.7.a) qu'en dessous de la fréquence de couplage, il n'y a quasiment pas de différence entre la réponse réelle et la réponse idéale, une fois que le comportement transitoire est achevé. Les caractéristiques temporelles associées à la réponse transitoire dépendent

du matériau viscoélastique et de l'inertie du rhéomètre, ce qui peut être observé dans les différentes expériences présentées sur la figure Fig.3.7. L'ordre de grandeur du temps caractéristique viscoélastique est $1/\lambda \cong 0.2s$, ce qui correspond à une atténuation des oscillations au bout d'un temps $5/\lambda$ pour l'expérience de fluage.

Pour des fréquences d'excitation autour et au-dessus de la fréquence de résonance, les figures Fig.3.7.b), c) et d), montrent que l'amplitude et le décalage fréquentiel sont toujours différents de la réponse idéale à cause d'un effet de couplage de la fréquence, contrairement à l'expérience de fluage parce que dans ce cas le système mécanique ne subit pas d'oscillations forcées. L'amplitude de déformation est augmentée autour de la fréquence de résonance (Fig.3.7.b), et diminue fortement au-dessus de sa valeur (Fig.3.7.d).

Sur la figure Fig.3.7, il est remarquable de constater que les réponses complexes de déformation puissent être précisément décrites avec un modèle linéaire aussi simple que celui de Maxwell-Jeffrey. De plus, les différents paramètres du modèle sont déterminés pour chaque fréquence appliquée, à partir d'un ajustement sur la première seconde.

3.4.2.1 Contrainte réelle subie par le matériau (contrainte effective)

La contrainte réelle subie est calculée grâce aux paramètres du modèle, à partir de l'équation Eq.3.2 et Eq.3.10. La solution asymptotique de la contrainte subie peut être exprimée comme :

$$\sigma(t)_{subie_{t\to\infty}} = \sigma_0 A sin(w_0 t + \delta) \tag{3.11}$$

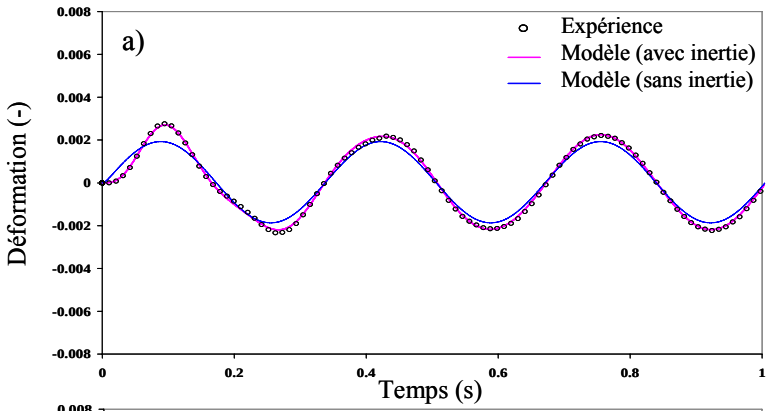
avec $A = \left[\left(1 + A_0 w_0^2\right)^2 + B_0^2 w_0^2\right]^{1/2}$ et $\delta = \frac{B_0 w_0}{1+A_0 w_0}$.

La figure Fig.3.8 montre que la contrainte subie par le matériau est différente de celle que l'on applique lorsque la fréquence d'excitation H_0 n'est pas beaucoup plus petite que la fréquence de couplage H_C , elle varie avec le temps durant la période de transition.

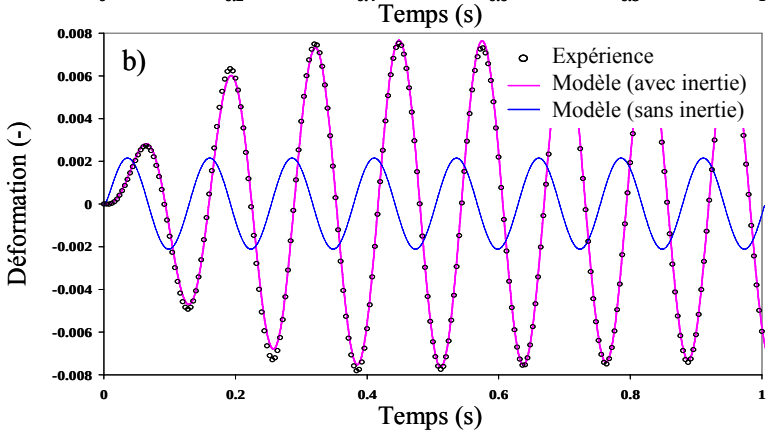
Les contraintes subies correspondantes aux réponses en déformation (Fig.3.7) sont représentées sur la figure Fig.3.8. Comme attendu, l'amplitude de la contrainte subie par le matériau est différente de celle que l'on applique et dépend de la fréquence d'excitation : en dessous de la fréquence de résonance, la contrainte subie est pratiquement de même amplitude ; elle est 3 fois plus grande que l'amplitude appliquée aux environs de la fréquence de résonance, et beaucoup plus petite à de hautes fréquences.

Il est à noter que les figures Fig.3.7 et Fig.3.8 montrent que la contrainte subie et la déformation engendrée sont de la même forme ; ceci s'explique par le comportement viscoélastique linéaire du matériau puisqu'il y a proportionnalité entre contrainte et déformation.

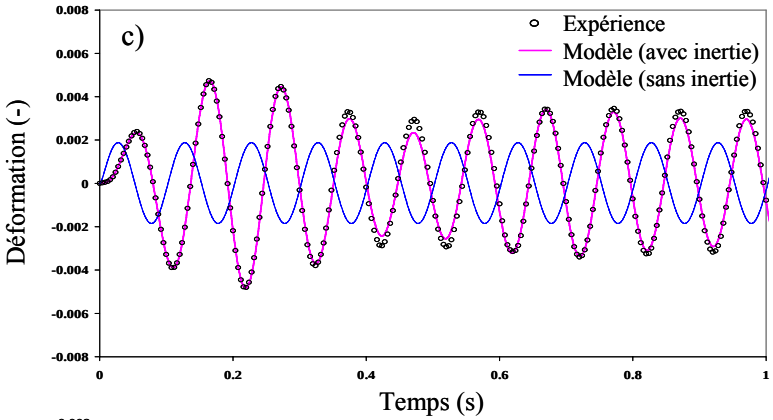
a): H_0=3Hz
G_1=52.6Pa
η_1=0.24Pa.s
η_0=173Pa.s



a): H_0=8Hz
G_1=45.8Pa
η_1=0.21Pa.s
η_0=100Pa.s



a): H_0=10Hz
G_1=53Pa
η_1=0.21Pa.s
η_0=100Pa.s



a): H_0=30Hz
G_1=56.6Pa
η_1=0.07Pa.s
η_0=19.5Pa.s

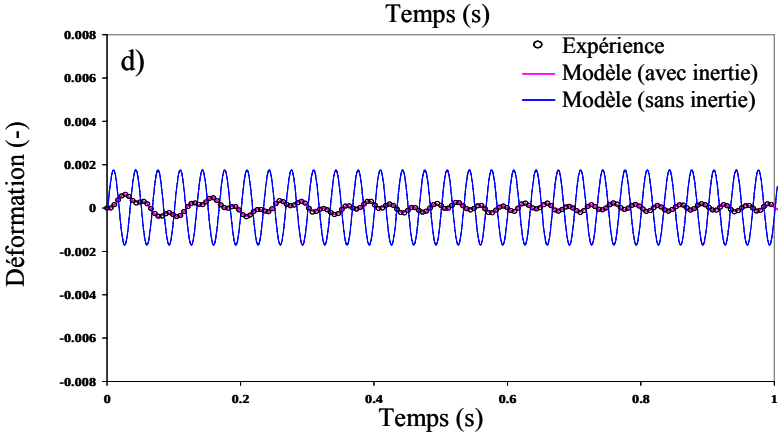
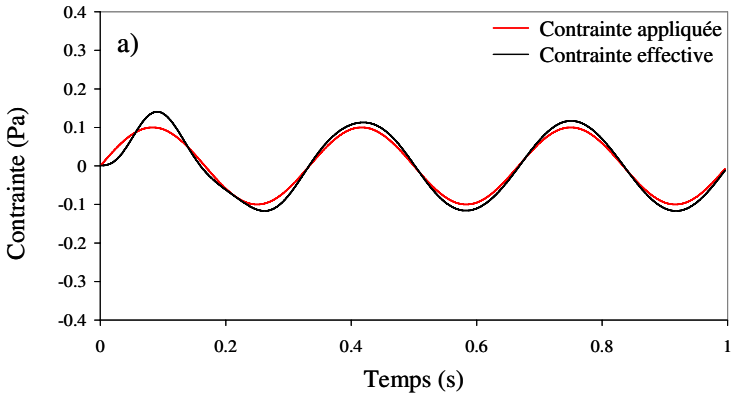
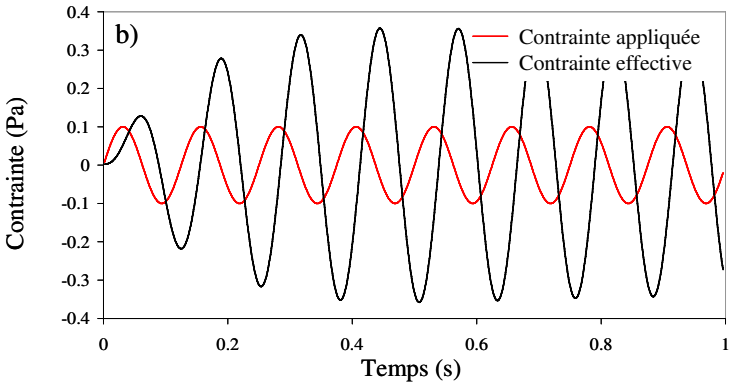


FIG. 3.7: *Réponse en déformation à différentes fréquences d'oscillation et d'amplitude* $0.1Pa$

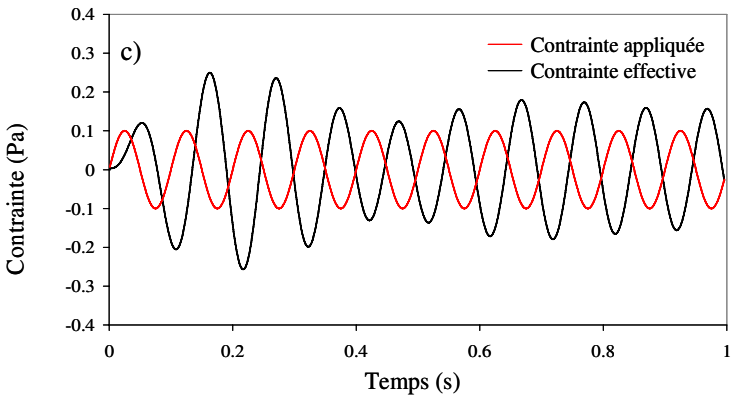
a): H_0=3Hz



b): H_0=8Hz



c): H_0=10Hz



d): H_0=30Hz

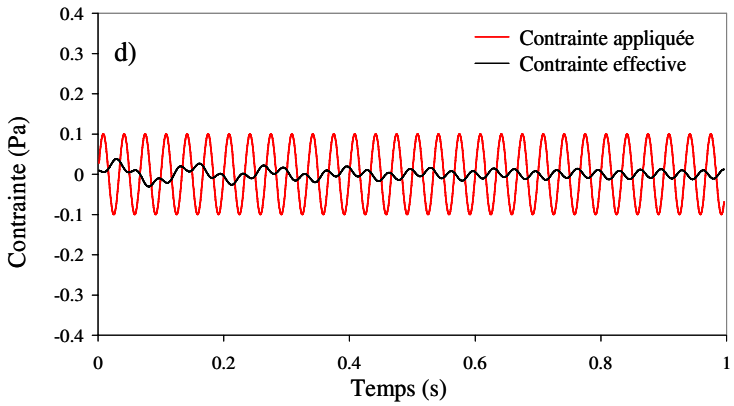


FIG. 3.8: *Contrainte subie par le matériau à différentes fréquences d'oscillation d'amplitude* $0.1Pa$

3.4.2.2 Analyse des résultats et discussion

Sur la figure Fig.3.9.a), nous présentons les amplitudes de la contrainte subie (théorique) $\sigma_0 A$, au-delà du temps de transition (environ 1s). La fréquence de résonance étant à environ $8Hz$, au-dessous de cette fréquence, la contrainte subie augmente menant à une divergence à la fréquence de résonance. Dans la pratique, cette divergence n'est jamais atteinte puisque le matériau réagit à cette augmentation par une modification de ses propriétés matérielles, plus exactement par une légère réduction de son élasticité qui, elle, suffit pour provoquer un décalage de la fréquence de résonance (Fig.3.9.b). La contrainte subie diminue avec la fréquence jusqu'à ce qu'elle s'annule à haute fréquence d'excitation. Ceci montre que le balayage en fréquence ne conduit pas à une amplitude de contrainte subie constante.

Ainsi, nous constatons qu'en faisant un balayage en fréquence, nous effectuerons simultanément un balayage en contrainte.

La figure Fig.3.9.b) représente l'analyse des résultats d'oscillation du rhéomètre : ces expériences ont été exécutées indépendamment en utilisant le traitement standard des données d'oscillations du logiciel du rhéomètre (oscillation pendant $6s$ et analyse pendant les 3 dernières secondes). En dépit de la correction interne de l'inertie dans l'analyse du logiciel d'oscillation, le rhéomètre échoue en donnant des valeurs incorrectes de G' et G'', au-dessus de la fréquence de couplage, comme nous pouvons le constater pour les valeurs négatives à des fréquences supérieures à 30Hz.

A partir des paramètres du modèle obtenus grâce à l'ajustement de la réponse en déformation (Fig.3.6), les valeurs de G' et G''peuvent être calculées avec :

$$G' = \frac{w_0^2/G_1}{1/\eta_0^2 + (1+\eta_1/\eta_0)w_0^2/G_1} \tag{3.12}$$

$$G'' = \frac{1/\eta_0 + (1+\eta_1/\eta_0)\eta_1 w_0^2/G_1^2}{1/\eta_0^2 + (1+\eta_1/\eta_0)w_0^2/G_1} \tag{3.13}$$

ces valeurs sont comparées avec celles obtenues par le rhéomètre (Fig.3.9 b). En effet, les résultats sont beaucoup plus cohérents, notamment pour les hautes fréquences. A basses fréquences, les caractéristiques viscoélastiques du matériau déterminées dans le cas du fluage et des oscillations sont différentes, notamment la valeur de l'élasticité G_1 ($G_{oscillations} = 52.6Pa$ (Fig.3.7.a)et $G_{fluage} = 68Pa$ (Fig.3.6)). En effet, les valeurs de G' calculées (Eq.3.12) sont sous estimées par rapport à celles mesurées par le rhéomètre (Fig.3.9.b). La comparaison de ces deux valeurs à celles obtenues à partir de l'expérience de fluage, en utilisant $G = \sqrt{G'^2 + G''^2}$, montre que les valeurs de G mesurées par le rhéomètre sont plus proches de celles obtenues par le fluage $G_{cal} < G_{TA} \cong G_{fluage}$. Ceci veut dire que la détermination des caractéristiques viscoélastiques d'un matériau à travers l'expérience

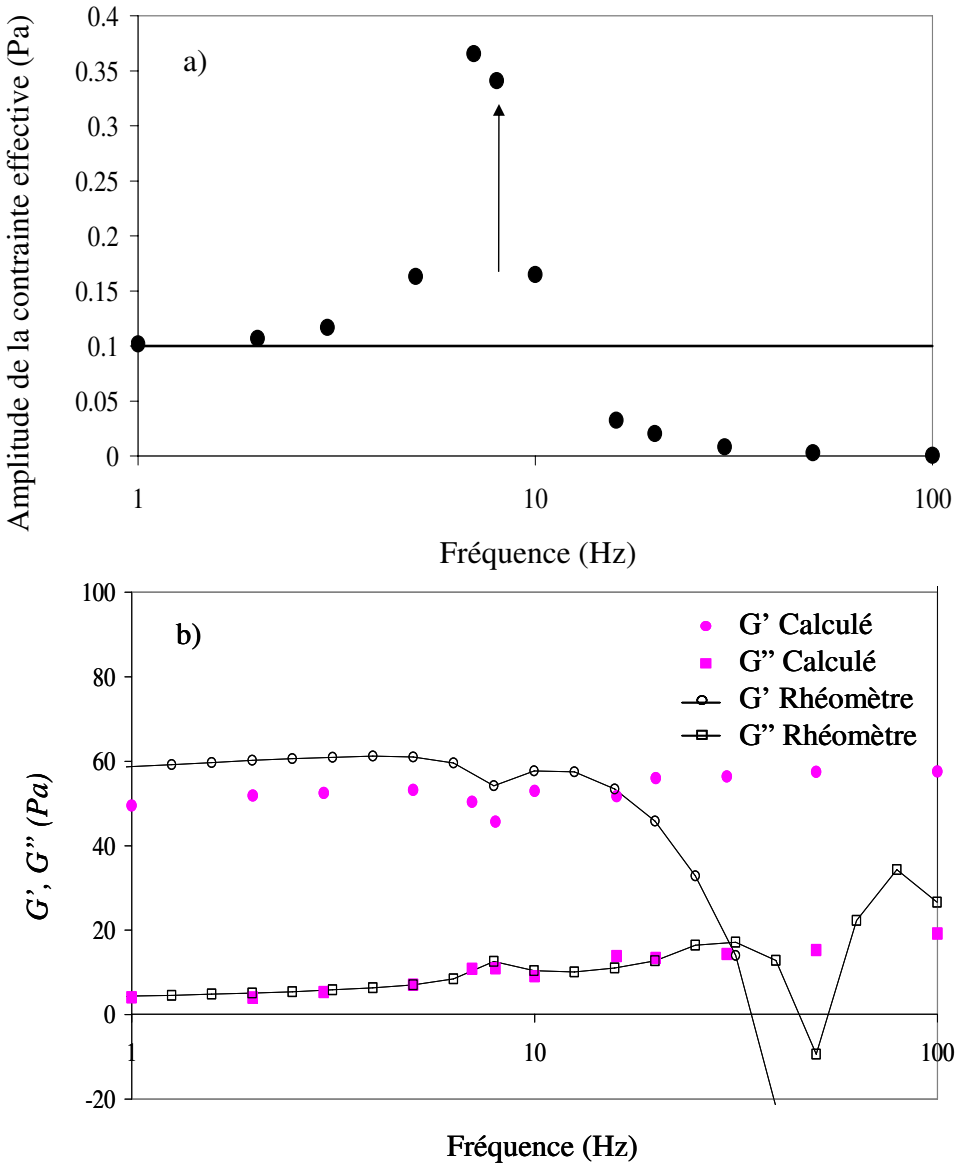


FIG. 3.9: *a) : Amplitude de la contrainte subie dans le régime d'état d'équilibre. b) : Comparaison des modules G' et G'' calculés à partir de l'équation Eq.3.10 et ceux analysés par le logiciel du rhéomètre (TA)*

d'oscillations (à faibles fréquences) est peu fiable et qu'une expérience de fluage est une bonne méthode de caractérisation viscoélastique d'un matériau.

3.5 Oscillations autour d'une contrainte non nulle 0.3Pa

La figure Fig.3.10 présente la déformation expérimentale pour des contraintes appliquées de différentes fréquences et de même amplitude ($0.1Pa$), autour d'une contrainte moyenne de 0.3Pa. Nous constatons qu'autour de la fréquence de couplage $8Hz$, le matériau réagit d'une manière

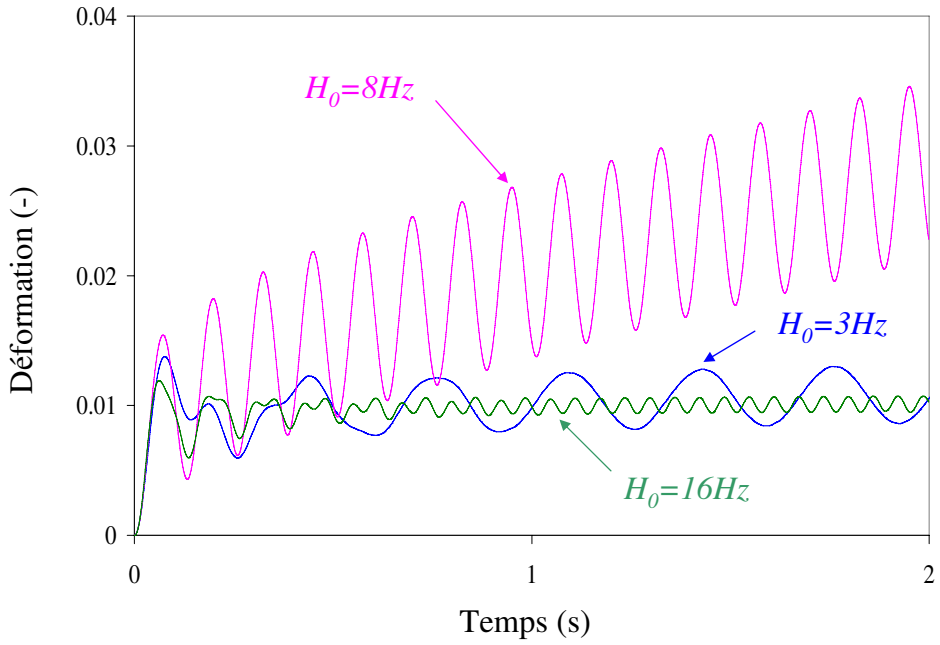


FIG. 3.10: *Réponse en déformation à une contrainte oscillante autour de* $0.3Pa$ *pour les fréquences de* 3, 8 *et* $16Hz$

fortement non linéaire puisqu'il commence à couler ! La contrainte totale subie correspondante est alors plus grande que la contrainte seuil du matériau (environ $0.6Pa$).Quand la fréquence appliquée est supérieure à la fréquence de couplage, l'amplitude de la contrainte significative subie (après le temps de transition) est plus petite que celle que l'on applique, et elle diminue avec la fréquence. Ceci montre, une fois de plus, que le balayage en fréquence conduit à un balayage de l'amplitude de la contrainte subie, en raison d'un effet résonnant non trivial.

3.6 Conclusion

Les expériences effectuées, dans ce chapitre, montrent en premier lieu, que des expériences d'oscillation en rhéomètrie contrôlée en couple doivent être très soigneusement interprétées. L'inertie de l'appareil et l'élasticité du matériau mènent à la manifestation d'une fréquence de couplage qui doit être évaluée. Son évaluation est accessible à travers l'expérience de fluage (Fig.3.6).

En deuxième lieu, pour les gels faibles cette fréquence de couplage est entre 1-100Hz, pour les élasticités inférieures à $10000Pa$ (on utilise $H_0 << H_C \cong \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{G'}{\alpha}}$). Par conséquent, les fréquences appliquées autour et au-dessus de cette fréquence correspondent à un changement de l'amplitude de la contrainte subie, ce qui est dû à un effet résonnant (Fig.3.9.a, Fig.3.10). Contrairement à l'intuition, les expériences de balayage en fréquence à contrainte appliquée constante correspondent

en fait à un balayage simultané en fréquence et en contrainte subie par le matériau.

Enfin, l'analyse de l'effet d'inertie sur divers échantillons montre les limitations fondamentales dans la caractérisation des gels faibles en utilisant un rhéomètre contrôlé en couple (contrainte), notamment dans les expériences d'oscillations forcées et en haute fréquence par rapport à la fréquence de couplage (Fig.3.9.b). Dans ce qui suit, nous utiliserons le fluage pour caractériser les différents matériaux étudiés.

Ces travaux sont résumés dans la publication qui suit [60].

Rheol Acta (2007) 46:577–581
DOI 10.1007/s00397-006-0135-x

ORIGINAL CONTRIBUTION

Unsteady rheometry: can we characterize weak gels with a controlled stress rheometer?

Christophe Baravian · Ghania Benbelkacem · François Caton

Received: 19 May 2006 / Accepted: 29 August 2006 / Published online: 15 November 2006
© Springer-Verlag 2006

Abstract This paper is concerned with the influence of apparatus inertia effects in controlled stress rheometry. As evidenced on creep experiments, the coexistence of apparatus inertia and viscoelasticity leads to a coupling frequency. For weak gels, this coupling frequency is typically between 1 and 100 Hz. Therefore, frequency sweeps around and above this coupling frequency also corresponds to an effective shear stress sweep evolution due to a non-trivial resonant effect. In other words, frequency sweep experiments are not made at constant shear stress. The detailed modelling and analysis of this inertia effect on a typical weak gel shows a clear and fundamental limitation for its characterization using a controlled stress rheometer. Also, alternative approaches to standard rheometer software analysis are proposed to take this coupling effect into account.

Keywords Unsteady rheometry · Weak gels · Control stress rheometer · Inertia effects

Introduction

Unsteady behaviour of complex fluids, like thixotropy and viscoelasticity is of fundamental importance in many industrial processes. While trying to measure these properties in a controlled stress rheometer, inertia effects have to be closely analysed to obtain the true material properties: Krieger (1990); Baravian and Quemada (1998a,b); Mackay et al. (1992); Frank (1992).

This paper was presented at the 3rd Annual Rheology Conference, AERC 2006, April 27-29, 2006, Crete, Greece.

C. Baravian (✉) · G. Benbelkacem · F. Caton
LEMTA CNRS UMR 7563 2, University of Nancy,
Avenue de la Foret de Haye, BP,
160 54504 Vandoeuvre lès Nancy Cedex, France
e-mail: christophe.baravian@ensem.inpl-nancy.fr

In controlled-stress rheometers, apparatus inertia effects have been first studied by I. Krieger (1990) and can be expressed as the momentum equation of the mobile part of the rheometer:

$$I\frac{\partial^2 D}{\partial t^2} = \Gamma_{\text{applied}} - \Gamma_{\text{effective}} \tag{1}$$

where I is the inertia momentum of the mobile part, D the axis angular displacement and Γ_{applied} and $\Gamma_{\text{effective}}$, respectively, the applied and the effective torques felt by the material. For linear materials, Eq. 1 can be written as:

$$\alpha\frac{\partial^2 \gamma}{\partial t^2} = \sigma_{\text{applied}} - \sigma_{\text{effective}} \text{ with } \alpha = \frac{IF_\sigma}{F_\gamma} \tag{2}$$

where γ is the deformation, σ_{applied} and $\sigma_{\text{effective}}$ the shear stress applied by the rheometer and the effective shear stress felt by the material, respectively. α is the inertia parameter and involves the inertia momentum of the mobile part, but also the shear stress and shear rate geometry factors F_σ and F_γ of the geometry. Equation 2 simply expresses that the effective shear stress felt by the material is indeed different from the applied shear stress when inertia effects are involved. Inertia problems are also solved if the effective shear stress is properly evaluated.

As proposed by Krieger (1990), the effective torque in Eq. 1 can be evaluated by performing a first-order derivation of the measured angular velocity or a second-order derivation of the acquired angular displacement. This may be difficult, even on modern rheometers, as the accuracy depends on both angular precision and data acquisition rate. The obvious solution is a direct measurement of the torque transmitted to the sample, a solution

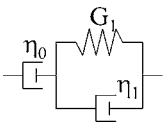
that is usually not implemented in controlled-stress rheometers, in contrast to rheometers with a separate torque transducer.

An improved estimation of the effective torque for ramp experiments (taking into account their real staircase shape) can be found in Baravian and Quemada (1998a).

For fluids, another unsteady effect can occur, associated with the development of the flow field in the studied sample. This is known as fluid inertia, which can be evaluated through a typical vorticity diffusion time as $t_{\text{diff}} \approx \rho e^2/\eta$, where ρ is the fluid density, η its dynamic viscosity and e the typical geometry gap. The characteristic time corresponding to apparatus inertia effects can be estimated through Eq. 2, the effective stress being replaced by $\eta\dot{\gamma}$: $t_{\text{inertia}} \approx \alpha/\eta$ (Baravian and Quemada 1998a). The ratio of these two characteristic times is independent on the fluid viscosity : $t_{\text{inertia}}/t_{\text{diff}} \approx \alpha/(\rho e^2)$. For a typical fluid density of 1,000 kg/m^3, in a standard geometry (e<1 mm and α>0.01 Pa s^2), the apparatus inertia effect clearly outlasts vorticity diffusion over at least one order of magnitude. Nevertheless, the effect of fluid inertia remains an instrumental limitation and can be accounted for in coaxial Couette geometry: Aschoff and Shümmer (1993); Hughes et al. (1998), and also in parallel plate geometry for oscillatory experiments: Böhme and Stenger (1990); Jones et al. (1987); Ding et al. (1999).

Instrumental inertia effects in controlled-rate rheometers also leads to a transitory regime, that cannot be modelled easily, as it is closely related to the feedback loop of the electronic device (Dullaert and Mewis 2005). As controlled-rate rheometers have a separate transducer to measure the torque, only the inertia of the transducer is relevant. Correction for transducer inertia is usually only necessary at high frequency.

The coupling between apparatus inertia and viscoelasticity stems for the inclusion in the inertia Eq. 2 of a material constitutive equation. For a Maxwell–Jeffreys model, the constitutive equation writes:



$$\eta_0 G_1\dot{\gamma} + \eta_1\eta_0\ddot{\gamma} = (\eta_1+\eta_0)\dot{\sigma} + G_1\sigma \quad (3)$$

where the shear stress is the effective shear stress felt by the material. Therefore, by using Eqs. 2 and 3:

$$\underbrace{\alpha[(\eta_1+\eta_0)\dddot{\gamma} + G_1\ddot{\gamma}]}_{Inertia} + \eta_0 G_1\dot{\gamma} + \eta_1\eta_0\ddot{\gamma} = (\eta_1+\eta_0)\dot{\sigma}_{\text{applied}} + G_1\sigma_{\text{applied}} \quad (4)$$

The form of Eq. 4 is very general. It is composed by an inertia term, involving not only the inertia parameter α but also viscoelastic constants and the general form of the constitutive equation. Once the applied shear stress is defined for a given experiment, Eq. 4 can be solved, giving an analytical solution.

In this study, we analyse the coupling between apparatus inertia and viscoelastic properties of weak gels in controlled-stress oscillatory regime. In the first part, the existence of a coupling frequency is shown on a creep experiment. Then, we analyse raw data in the oscillatory regime and show that a resonant effect is nearly always present in standard rheometry. An analytical approach is used to understand this complex phenomenon on weak gels.

Creep experiment

When applying a shear stress step, inertia effects lead to "free" oscillations (Struik 1967; Roscoe 1969; Deiber and Peirotti 1995; Zölzer and Eicke 1993) when the elasticity is high enough (Baravian and Quemada 1998b). For a given model, these oscillations, due to inertia, can be used to characterize the material viscoelastic properties (Baravian and Quemada 1998b).

Solving Eq. 4 with $\sigma_{applied}(t) = \sigma_0 h(t)$, where σ_0 is the step stress amplitude and $h(t)$ the Heaviside function, we find:

$$J(t) = \frac{t}{\eta_0} - A + e^{-\lambda t}\left[A\cos(\omega t) + \frac{\lambda}{\omega}\left(A - \frac{1}{\lambda\eta_0}\right)\sin(\omega t)\right] \quad (5)$$

with $A = \frac{\alpha(\eta_1+\eta_0)}{\eta_0 G_1}\left(\frac{2\lambda}{\eta_0} - \frac{1}{\alpha}\right)$, $\lambda = \frac{\alpha G_1 + \eta_1\eta_0}{2\alpha(\eta_1+\eta_0)}$ and $\omega = \sqrt{\frac{\eta_0 G_1}{\alpha(\eta_1+\eta_0)} - \lambda^2}$ for $G_1 \geq \frac{2\eta_0^2}{\alpha}\left(1 + \frac{\eta_1}{2\eta_0} + \sqrt{1+\frac{\eta_1}{\eta_0}}\right)$.

For times greater than the damping time $1/\lambda$, a standard retarded elasticity of the form $\sum_{i>1}\frac{1}{G_i}e^{\frac{G_i}{\eta_i}t}$ can be used to model the compliance evolution with time, using the Boltzman superposition principle. The important result is that the frequency of oscillations H_c is well-defined as shown in Fig. 1. It can also be roughly estimated as $H_c = \frac{\omega}{2\pi} \cong \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{G_1}{\alpha}}$, as generally $\eta_0 >> \eta_1$ and $G_1/\alpha >> \lambda$.

Figure 1 shows an experimental result on a creep experiment for a carbopol gel at 0.075% mass concentration (Carbopol 940 provided by BF Goodrich). A Maxwell–Jeffreys model is adjusted to the experimental data. The inertia parameter is α=0.02 Pa s^2 (AR2000, TA instrument and cone-plate geometry: 6 cm, 2 °). We also show in Fig. 1 the same model response calculated for an ideal rheometer (without inertia). We can see that inertia can indeed be used to measure very accurately the viscoelastic properties of the studied sample (Baravian and Quemada 1998b). The oscillation frequency is, for this material, close to 8 Hz.

A simple mechanical analogy of the effect of inertia coupling for creep experiments is a mass attached to a spring that is dropped at the origin of time. When, instead

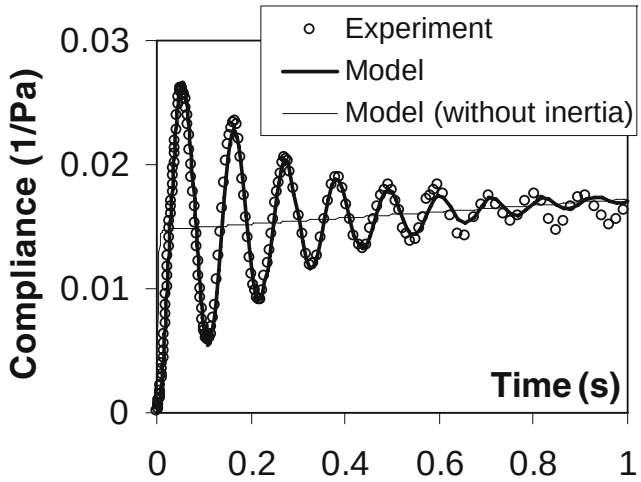


Fig. 1 Creep experiment for a 0.075% mass concentration of Carbopol 940. *Open circles* are experimental results. The *solid thick line* corresponds to adjustment of Eq. 5 with G_1=68 Pa, η_1=0.16 Pa s and η_0=400 Pa s. The *solid thin line* is the same Maxwell–Jeffreys model on an ideal rheometer without inertia

of a creep experiment, forced oscillations are performed on this mass-spring system, a resonant phenomenon is expected when the applied frequency H_0 is close to the coupling frequency H_c, leading to a divergence of the deformation amplitude for an ideal linear spring. For weak gels, when deformation is increased, the material will react through a modification of its mechanical properties, leading to a nonlinear behaviour localized around the coupling frequency.

Forced oscillations

For forced oscillations, the applied shear stress is given by $\sigma_{\text{applied}}(t) = \sigma_0 \sin(2\pi H_0)$, where σ_0 is the amplitude of oscillations and H_0 the applied frequency. By replacing this expression in Eq. 4, we solve the motion equation for a Maxwell–Jeffreys model.

$$\gamma(t) = \frac{\sigma_0\omega_0}{\alpha}\left\{\frac{A_0}{\omega_0}\sin(\omega_0 t) - \frac{B_0}{\omega_0^2}\cos(\omega_0 t) - \frac{e^{-\lambda t}}{\lambda^2+\omega^2} \times\left[C_0\cos(\omega t) + D_0\sin(\omega t) + \frac{B_0}{\omega_0^2} + \frac{C_0}{\lambda^2+\omega^2}\right]\right\} \tag{6}$$

with $A_0 = \frac{\lambda^2+\omega^2-\omega_0^2-\frac{2\lambda G_1}{\eta_1+\eta_0}}{\left(\lambda^2+\omega^2-\omega_0^2\right)^2+4\lambda^2\omega_0^2}$, $B_0 = \frac{\frac{G_1}{\eta_1+\eta_0}+2\lambda\omega_0^2 A_0}{\lambda^2+\omega^2-\omega_0^2}$, $C_0 = -2\lambda A_0 - B_0$, $D_0 = \frac{C_0\lambda + A_0\left(\lambda^2+\omega^2\right)}{\omega}$ and ω_0=$2\pi H_0$. Values of ω and λ are identical as defined for Eq. 5.

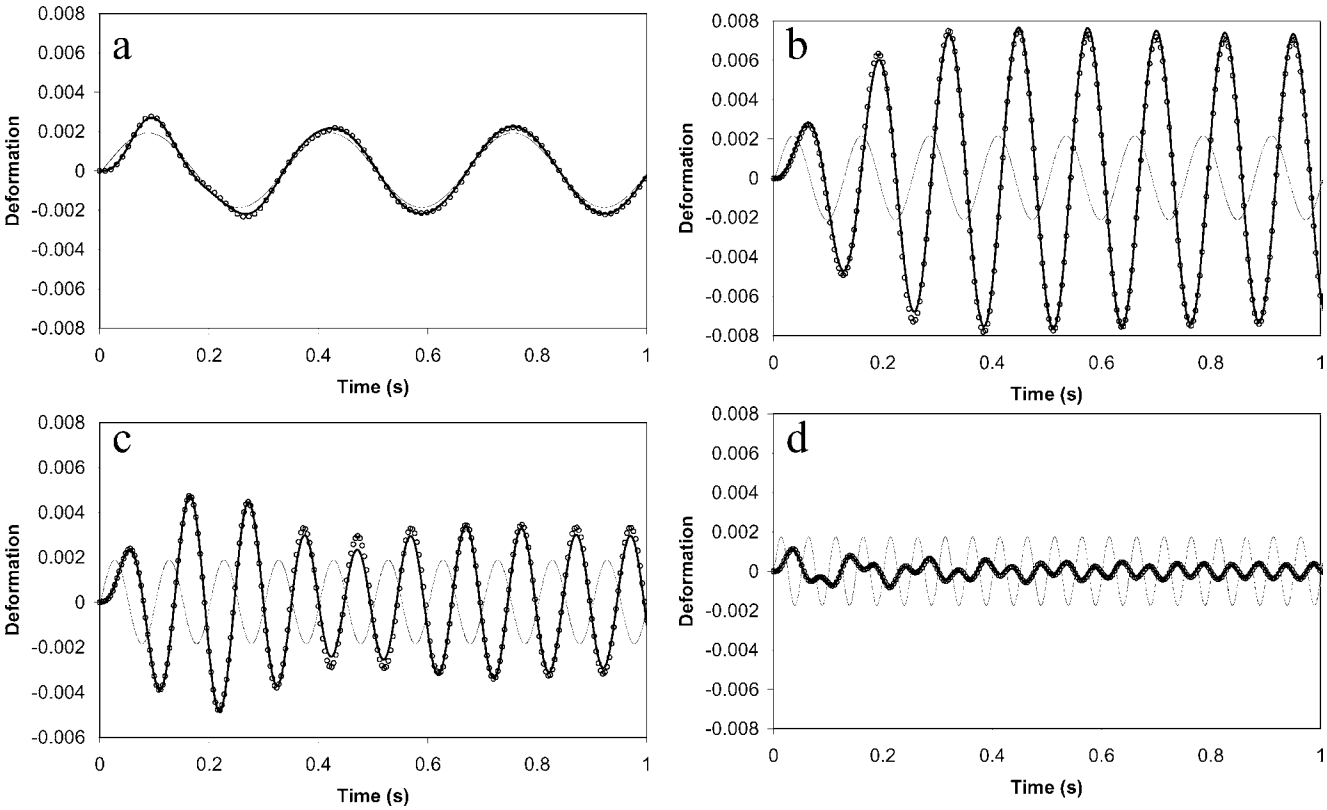


Fig. 2 Deformation vs time at various frequencies for an applied oscillation shear stress amplitude of 0.1 Pa. *Solid thick line*: adjustment of Eq. 6. *Solid thin line*: Same Maxwell–Jeffreys model on an ideal rheometer without inertia: **a** 3 Hz. G_1=52.6 Pa, η_1=0.24 Pa s and η_0=173 Pa s; **b** 8 Hz. G_1=45.8 Pa, η_1=0.21 Pa s and η_0=100 Pa s; **c** 10 Hz. G_1=53 Pa, η_1=0.14 Pa s and η_0=100 Pa s and **d** 20 Hz. G_1=56.6 Pa, η_1=0.07 Pa s and η_0=19.5 Pa s

Figure 2 shows results at frequencies below, around and above the coupling frequency. On each experimental curve, the Maxwell–Jeffreys model is adjusted. To outline the importance of inertia effects for each experiment, the same model parameters are used to calculate the material response to an ideal rheometer (without inertia). We can see in Fig. 2 that below the coupling frequency (Fig. 2a), there is no real difference between the actual response and the ideal response once the transient behaviour ends. The characteristic time associated to this transient response depends on material viscoelasticity and rheometer inertia and is present in all experiments presented in Fig. 2. Its order of magnitude can be estimated for a Maxwell–Jeffreys model as $1/\lambda \approx 0.2$ s, which also corresponds to the characteristic time for the oscillation damping in the creep experiment (Fig. 1).

In the case of forced oscillations, the amplitude and frequency shifts are still very different from the ideal response even after this coupling time, unlike in creep experiments (Fig. 1), because the mechanical system is continuously forced. The amplitude of deformation increases strongly around the coupling frequency (Fig. 2b) and decreases above its value (Fig. 2d).

It is remarkable in Fig. 2 that the complex deformation responses can be very accurately modelled with a simple linear Maxwell–Jeffreys model. Actually, different model parameters are determined for each applied frequency and each applied shear stress amplitude by fitting the model over the first second.

From the model parameters adjusted on each experimental curve, we can calculate the effective shear stress from Eqs. 2 and 6. The asymptotic solution for the effective shear stress in oscillation experiments can be expressed as:

$$\sigma_{\underset{t\to\infty}{\text{effective}}} = \sigma_0 A \sin(\omega_0 t + \delta) \tag{7}$$

with $A = \left[\left(1 + A_0\omega_0^2\right)^2 + B_0^2\omega_0^2\right]^{1/2}$ and $\delta = \frac{B_0\omega_0}{1+A_0\omega_0}$.

In Fig. 3, we represent the amplitude of the effective shear stress ($\sigma_0 A$) after the transient time (typically at 1 s). This effective shear stress is clearly different from the applied shear stress when the applied frequency H_0 is not small compared to the coupling frequency H_c and is also varying in time during the transient time. The resonant frequency is clearly seen around 8 Hz. Below this frequency, the effective shear stress increases, leading to a theoretical divergence at the coupling frequency. This divergence is in practice never attained, as the material reacts to this shear stress increase by a modification of its material properties through a reduction of its elasticity, which slightly (but sufficiently) shifts the coupling frequency (Fig. 3b).

Figure 4 shows deformation experiments for the same oscillation amplitude of 0.1 Pa, performed in superposition

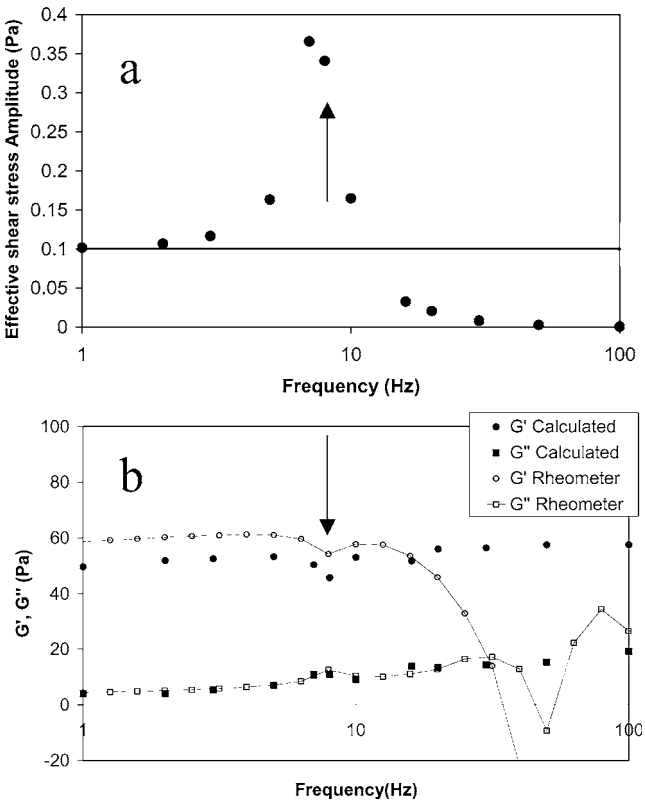


Fig. 3 **a** Effective shear stress amplitude in the steady state regime (Eq. 7). The *solid line* corresponds to the applied shear stress. **b** Comparison of shear modulus G' (*circular symbols*) and G′ (*square symbols*). *Closed symbols*: calculated from the model (Eq. 6) on deformation vs time data (Fig. 1). *Open symbols*: standard analysis from TA Instruments software

to a constant applied shear stress of 0.3 Pa. Close to the coupling frequency (around 8 Hz), the material reacts in a strongly nonlinear way as it starts to flow. In this case, the total effective shear stress amplitude is larger than the yield stress of the material (close to 0.7 Pa). When the applied frequency is larger than the coupling frequency, the

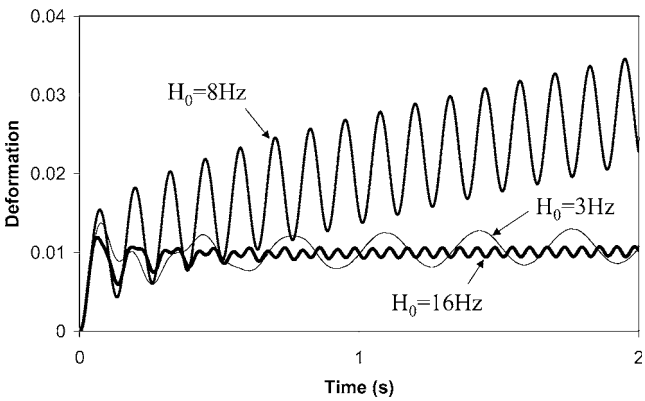


Fig. 4 Deformation experiments for an applied shear stress $\sigma_{\text{applied}}(t) = 0.3 + 0.1\sin(2\pi H_0 t)$ with H_0=3 Hz, H_0=8 Hz and H_0=16 Hz. Close to the resonance (H_0=8 Hz), the material flows

effective shear stress amplitude is significantly smaller than the applied shear stress (Figs. 3a and 4) and even drops to zero (Fig. 3a). This clearly shows that frequency sweeps are not performed at constant effective shear stress.

Figure 3b also shows the results from the standard rheometer analysis of oscillations. These experiments have been performed independently using the standard oscillation data treatment of the rheometer software (oscillations over 6 s, with analysis of the last 3 s). Despite the internal correction of inertia present in the oscillation software analysis, the rheometer fails in giving correct values for G' and G'' above the coupling frequency, leading to negative G' values for frequencies greater than 30 Hz. From the model parameters adjusted on the direct deformation vs time response, G' and G'' values can be calculated as $G' = \frac{\omega_0^2/G_1}{1/\eta_0^2+(1+\eta_1/\eta_0)\omega_0^2/G_1^2}$ and $G'' = \omega_0 \frac{1/\eta_0+(1+\eta_1/\eta_0)\eta_1\omega_0^2/G_1^2}{1/\eta_0^2+(1+\eta_1/\eta_0)\omega_0^2/G_1^2}$. These values are compared to forced oscillations in Fig. 3b. The results are much more self-consistent, especially at frequencies higher than the coupling frequency.

Conclusion

This study shows that oscillation experiments for weak gels in controlled-stress rheometry have to be very carefully interpreted. Apparatus inertia and material elasticity lead to a coupling frequency that needs to be evaluated. For instance, its evaluation is accessible through a creep experiment or a G′ measurement for a sufficiently low frequency experiment $H_0 << H_c \cong \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{G'}{\alpha}}$. For a standard geometry in controlled-stress rheometers, this coupling inertial effect will always be present between 1 and 100 Hz for sample elasticity smaller than 10,000 Pa. So, apparatus inertia effects are always present for weak gels.

For oscillation measurements, this coupling frequency is a fundamental limitation, because performing a frequency sweep around and above this coupling frequency will also correspond to a shear stress sweep (Fig. 3a): around the coupling frequency, the effective shear stress is much greater than the applied shear stress, and for frequencies above the coupling frequency, the effective shear stress is strongly decreased, dropping to zero at high frequency. The use of the simple analytical approach described in this paper can improve the accuracy of oscillatory analysis and provides a very accurate description of the viscoelastic behaviour of the material in creep experiments.

To overcome this fundamental limitation in controlled-stress rheometers (also present when these rheometers are used in the controlled strain mode), specially designed transducers have to be developed for an active control of the effective shear stress.

Acknowledgments We thank Bernard Costello from TA Instruments for providing the program software that allowed direct control of the motor and row results from the displacement encoder. All displacement experiments (Figs. 2 and 4) were obtained with this specially designed software.

References

Aschoff D, Shümmer P (1993) Evaluation of unsteady Couette-flow measurement under the influence of fluid inertia. J Rheol 37(6):1237–1251

Baravian C, Quemada D (1998a) Correction of instrumental inertia effects in controlled stress rheometry. Eur Phys J Appl Phys 2:189–195

Baravian C, Quemada D (1998b) Using instrumental inertia effects in controlled stress rheometrers. Rheol Acta 37:223–233

Böhme G, Stenger M (1990) On the influence of fluid inertia in oscillatory rheometry. J Rheol 34(3):415–424

Deiber JA, Peirotti MB (1995) Free damped oscillations of the linear viscoelastic material. Rheol Acta 34:317–320

Ding F, Giacomin AJ, Bird RB, Kweon C-B (1999) Viscous dissipation with fluid inertia in oscillatory shear flow. J Non-Newtonian Fluid Mech 86:359–374

Dullaert K, Mewis J (2005) Thixotropy: build-up and breakdown curves during flow. J Rheol 49(6):1213–1230

Frank AJP (1992) Importance of inertia for controlled stress rheometers. In: Theoretical and Applied Rheology. Elsevier Science, Belgium

Hughes JP, Davies JM, Jones TER (1998) Concentric cylinder end effects and fluid inertia effects in controlled stress rheometry I. Numerical simulation. J Non-Newton Fluid Mech 77:79–101

Jones TER, Davies JM, Thomas A (1987) Fluid inertia effects on a controlled stress rheometer in its oscillatory mode. Rheol Acta 26:14–19

Krieger I (1990) The role of instrument inertia in controlled-stress rheometers. J Rheol 34:471–483

Mackay ME, Liang C-H, Halley PJ (1992) Instrument effects on stress jump measurements. Rheol Acta 31:481–489

Struik LCE (1967) Free damped vibrations of linear viscoelastic materials. Rheol Acta 6:119–129

Roscoe R (1969) Free damped oscillations in viscoelastic materials. J Phys D Appl Phys 2(2):1261–1266

Zölzer U, Eicke H-F (1993) Free oscillatory shear measurements—an interesting application of constant stress rheometers in the creep mode. Rheol Acta 32:104–107

Chapitre 4

Nonlinear viscoelasticity and temporal behavior of typical yield stress fluids : Carbopol, Xanthan and Ketchup

G. Benmouffok-Benbelkacem(1), F. Caton(2), C. Baravian (1), S. Skali-Lami(1)

(1) Nancy-University, LEMTA, CNRS, 2 avenue de la Forêt de Haye, BP 160, 54504 VANDOEUVRE CEDEX, France

(2) Laboratoire de rhéologie, BP 53 Domaine Universitaire 1301 rue de la Piscine 38041 Grenoble, Cedex 9 - France

Les propriétés viscoélastiques de plusieurs fluides à seuil sont difficiles à mesurer en dehors du régime viscoélastique linéaire, en particulier aux dessus du seuil. Ces propriétés sont étudiées pour différents fluides à seuil en utilisant un rhéomètre à contraintes imposées. L'utilisation des oscillations inertio-élastiques i.e. le couplage entre l'inertie de l'appareil et la viscoélasticité du matériau permet de décrire le comportement rhéologique du matériau sous cisaillement. Le résultat obtenu est surprenant, l'élasticité de ces matériaux ne disparaît pas même pour des contraintes appliquées supérieures à la contrainte seuil. Mieux, la thixotropique, le comportement viscoéastique retardé ou encore la fracturation du matériau sont déterminés sans ambiguïté.

Sommaire

4.1 Introduction **89**

4.2 Theory **90**

4.3 Experimental system and materials **93**

4.4 Rheological methods and procedures **94**

4.5 Results and discussion 98
4.6 Conclusions 104

Abstract The viscoelastic properties of many commercial yield stress fluids are difficult to measure outside the linear viscoelastic regime, in particular above their yield stress. These properties are investigated for several common yield stress fluids using a controlled stress rheometer. Using inertio-elastic oscillations, i.e. the coupling between the instrument's inertia and the viscoelasticity of the materials, the complete simple shear rheology can be determined, including viscoelasticity under flow, showing that the elasticity of the yield stress fluids does not disappear when the applied stress is larger than the yield stress. Actually, all the tested materials have an almost constant elasticity below and above the yield stress, even for applied stresses several times larger than the yield stress. Better, the thixotropic, retarded viscoelastic or fracturing behavior of the materials is unambiguously determined.

Keywords Viscoelasticity. Yield stress fluids. Creep measurements. Shear rheology. Controlled tress rheometry

4.1 Introduction

Yield stress fluids are materials that can behave both like liquids and solids, depending on the applied stress. On the one hand, when the applied stress is low enough, these materials behave like soft elastic solids while, for large enough stresses, they flow like liquids. This kind of behavior is very interesting from an industrial point of view as the solid behavior corresponds to products stability and durability while the liquid behavior allows to apply processes such as sterilization or mixing. Clearly, the viscoelasticity of yield stress fluids plays an important role in their industrial processing as it directly influences the design, efficiency and properties of those processes. However, the determination of the viscoelastic properties of those materials in both solid and fluid regimes is no simple task as it corresponds to determining their complete non-linear viscoelastic properties. The central problem, as explained in some detail by Yao [61] is that most rheometrical methods (such as the Large Amplitude Oscillations) designed to determine these non linear properties are ad-hoc extensions of linear methods, which pertinence is, at best, questionable. Worse, the most appropriate method, consisting in small amplitude oscillations around a non linear state simply rarely work in our case, because of the irreversible flow that occurs as soon as the yield stress is overcome. In consequence, non-linear viscoelastic data for yield stress fluids are very rare.

Recently however, a method has been proposed that can be used for this task. Indeed, the determination of the linear viscoelastic properties of materials using controlled stress oscillations generates apparatus inertia effects which must be closely analysed to obtain the true material properties [25, 62]. These effects can be thought either as an experimental limitation or as a useful tool for the characterization of materials [26, 63, 59]. Baravian [28] devised a method called « inertio-

elastic oscillations »that allows to characterize the non-linear behavior of complex fluids in the solid regime. More recently, Baravian [60] compared this method with oscillations experiments. The inertio-elastics method appeared to be the more reliable method because of the resonance effect generated in the oscillations measurements. Finally, Yao and Larson [61] compared several rheometrical methods used to determine the non linear viscoelastic behavior of fibrin gels. They showed that the method using inertio-elastic oscillations not only allows to determine the appropriate material properties, but is also the most straightforward and accurate method. Interestingly, those autors also underline that the oscillations occur in sufficiently short time spans so that the measurements can be made before structural changes occur.

In the present work, using the above strong foundations, we investigate the nonlinear viscoelastic properties and the temporal behavior of several common yield stress fluids (Carbopol 940 at 0.3%, Xanthan at 2% and Ketchup). Our aim is to show that very simple creep experiments provide a complete characterization of the simple shear rheology of these complex materials. By applying successive creeps, the viscoelastic behavior of the material as well as its temporal dependence can be described both below and above yield. First, we present the modelling of the interaction between the viscoelasticity and the apparatus inertia used to analyse the experimental data. Then, we expose the experimental system and the measurement methods. Finally, we present and discuss the results.

4.2 Theory

4.2.1 Coupling between the instrumental inertia and the fluid's viscoelasticity

The equation of motion of the mobile part of the rheometer can be expressed as [25] :

$$I \cdot \frac{\partial^2 D}{\partial t^2} = \Gamma_{app} - \Gamma_{felt} \tag{4.1}$$

I is the inertia momentum of the mobile part, D its angular displacement. Γ_{app} and Γ_{felt} are respectively, the torque applied by the rheometer and the torque felt by the materials.

By assuming that shear is homogeneous in the gap, the equation Eq.4.1 can be written as :

$$\alpha \cdot \frac{\partial^2 \gamma}{\partial t^2} = \sigma_{app} - \sigma_{felt} \tag{4.2}$$

with $\alpha = I\frac{F_\sigma}{F_\gamma}$ where γ is the deformation, $\sigma_{applied}$ and σ_{felt} are respectively the shear stress applied by the rheometer and the shear stress felt by the material. α is the inertia parameter and involves not only the inertia momentum of the mobile part, but also the shear stress and the shear rate geometrical factors F_σ and F_γ of the used geometry.

4.2.2 Locally Linear Viscoelastic Model.

Figure Fig.4.1 shows an example of the evolution of the measured strain for two successive creep measurements. These curves are taken in the middle of a rheometrical procedure that will be described in part 4.5. At this moment of the experiment, the applied stresses is about twice the yield stress.

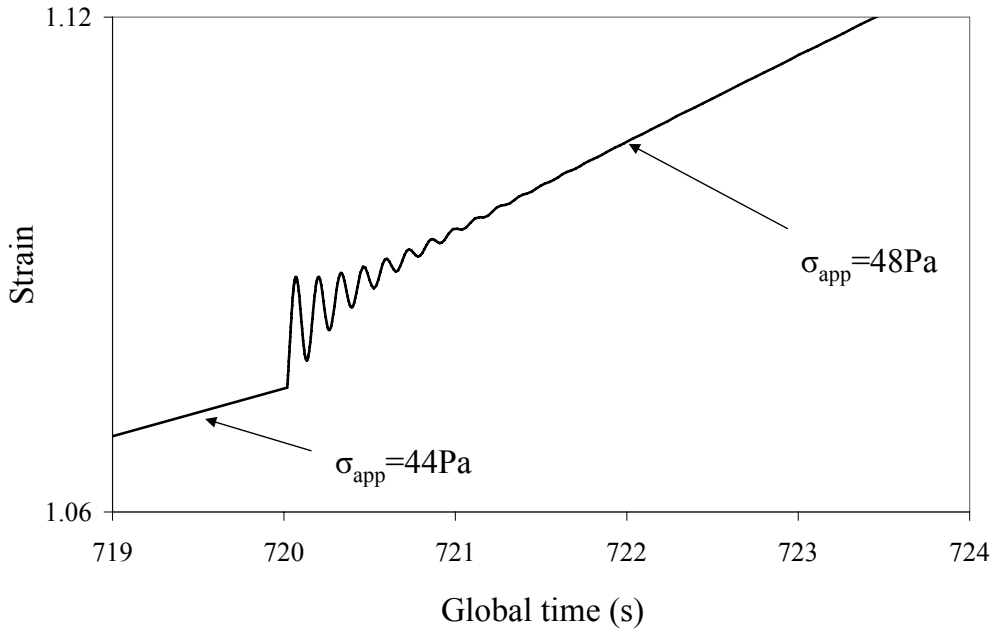


FIG. 4.1: *Strain response for 2 successives creeps at 44Pa and 48Pa for the Carbopol solution (0.3%). Both stresses are about twice the yield stress.*

As already discussed by Baravian [60] and Yao [61] the strain oscillations of figure Fig.4.1 are of small amplitude relative to the total strain experienced by the material. As a matter of fact, those perturbations are small enough to be well described by a linear approximation of the complete constitutive equation. So, the behavior of the material can be described using this method as long as the *locally* linear approximation is valid. This supposes that the actual changes in shear stress are close to quasi static. Experimentally, if the shear stress steps are too large, a locally linear model does not describe the data well. Thus it is simply a matter of designing the experiment so that this condition is satisfied.

Finally, we choose to describe the materials by a Maxwell-Jeffrey model (see Fig.4.2), as it is the simplest model able to describe simultaneously the behavior of a viscoelastic material which may be dominated either by its elastic or viscous behavior. This model has two viscoelastic characteristic

times η_1/G and η_2/G with $\eta_1/G \ll \eta_2/G$:

$$\eta_2 G(\sigma)\dot{\gamma} + \eta_1(\sigma)\eta_2(\sigma)\ddot{\gamma} = (\eta_1(\sigma) + \eta_2(\sigma))\,\dot{\sigma} + G(\sigma)\sigma \tag{4.3}$$

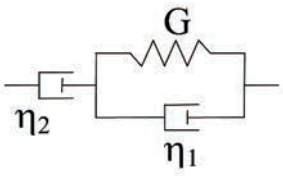


FIG. 4.2: *Analogical diagram of the Maxwell-Jeffrey model*

4.2.3 Equations of motion.

The coupling between instrumental inertia (Eq.4.2) and the fluid's viscoelasticity described by the Maxwell-Jeffrey model (Eq.4.3), allows to obtain the motion equation of the material :

$$\underbrace{\alpha\left[(\eta_1+\eta_2) + G\ddot{\gamma}\right]}_{inertia} + \eta_2 G\dot{\gamma} + \eta_1\eta_2\ddot{\gamma} = (\eta_1+\eta_2)\,\dot{\sigma}_{app} + G\sigma_{app} \tag{4.4}$$

The equation Eq.4.4 is composed by an inertia term, involving not only the inertia parameter, but also the viscoelastic parameters. Once the form of the applied shear stress is defined for a given experiment (Eq.4.4) can be solved, giving an analytical solution.

4.2.4 Analytical solution for successions of creep experiments

Creep experiments consist in sudden changes in the applied torque. A schematic representation of a creep is plotted on figure Fig.4.3.

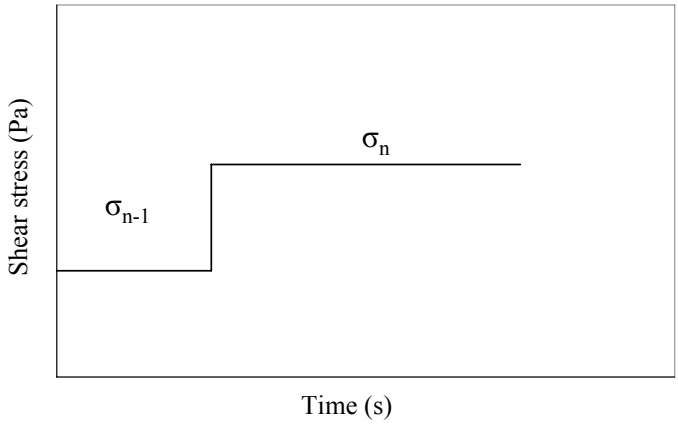


FIG. 4.3: *Creep of the n^{th} step*

Thus, the equation Eq.4.4 is solved with :

$$\sigma_{applied}(t) = \sigma_{n-1} + \Delta\sigma_n.h(t) \tag{4.5}$$

where $\Delta\sigma_n = \sigma_n - \sigma_{n-1}$; with σ_n and σ_{n-1} are respectively the shear stress applied at the n^{th} and $(n-1)^{th}$ creep step ; $h(t)$ is the Heaviside distribution function.

The solution is :

$$\begin{aligned}\gamma_n(t) = & \quad \sigma_{n-1}\left[-\frac{2\lambda}{B\eta_2} + \frac{t}{\eta_2} + e^{-\lambda t}\left(\frac{2\lambda}{B\eta_2}cos(\omega t) + \frac{\lambda^2-\omega^2}{B\eta_2\omega}sin(\omega t)\right)\right] \\ & + \quad \Delta\sigma_n\left[-\beta + \frac{t}{\eta_2} + e^{-\lambda t}\left(\beta cos(\omega t) + \frac{\lambda}{\omega}\left(\beta - \frac{1}{\lambda\eta_2}\right)sin(\omega t)\right)\right] \\ & + \quad \dot{\gamma}_{n-1}\left[\frac{2\lambda}{B} + e^{-At}\left(\frac{2\lambda}{B}cos(\omega t) + \left(\frac{1}{\omega} - \frac{2\lambda^2}{\omega B}\right)sin(\omega t)\right)\right]\end{aligned} \tag{4.6}$$

with : $\beta = \frac{1}{B}\left(\frac{2\lambda}{\eta_2} - \frac{1}{\alpha}\right)$, $B = \frac{\eta_2 G}{\alpha(\eta_1+\eta_2)}$, $\lambda = \frac{\alpha G+\eta_1\eta_2}{2\alpha(\eta_1+\eta_2)}$ et $\omega = \sqrt{\frac{\eta_2 G}{\alpha(\eta_1+\eta_2)} - \lambda^2}$ for : $G \geq \frac{2\eta_2^2}{\alpha}\left(1 + \frac{\eta_1}{2\eta_2} + \sqrt{1+\frac{\eta_1}{\eta_2}}\right)$.

In general, a creep experiment leads to inertio-elastic oscillations at short times, when the elasticity is sufficient ([59, 28, 60]). It is the case for all materials studied here. Fitting this model to the temporal strain data gives the three viscoelastic material properties as a function of the applied stress.

4.3 Experimental system and materials

4.3.1 Materials

Three typical yield stress materials are studied : Ketchup, Carbopol 0.3% and Xanthan 2%.

The Ketchup solution is an industrial product (Vitahiour), mainly made of tomato puree (see [64]) The Carbopol gel (Carbopol 940 provided by BF Goodrich) was prepared at 0.3%, using magnetic agitation, in demineralized water. It was progressively neutralized at pH=7 with NaOH solution (during 1 hour agitation). The prepared solution was kept at rest at room temperature for four days. For details about carbopol solution structures and properties, see [37]. The xanthan (a natural polysaccharide) used in this study, was obtained from *Skw Biosystems*. The powder was diluted to 20g/l (2%), in salted demineralized water with 0.1 mol/l of NaCl. The solution was prepared using magnetic agitation, and was heated at 80^0C during 1 hour. In order to hydrate and cool the polymer, the prepared solution was kept at rest at room temperature for more than 12 hr prior to conducting the rheological measurements (see [34]). To avoid degradation of both Carbopol and Xanthan solutions (development of bacteria), a few drops per liter of Formaldehyde (37%) solution was added.

All measurements are taken at 20^0C.

4.3.2 Measurement techniques

The viscoelastic properties of the materials were measured using a controlled-stress rheometer (AR 1000) and a 6 blades vane geometry with an external cylinder ($R_e = 24mm$). The vane is used to reduce the wall effects (slip) (e.g. [65]) and requires a specific calibration procedure to determine the shear rate and shear stress average geometric factors (respectively F_σ and F_γ). The procedure, described in details in [16] gives an equivalent radius of $R_i = 10.4mm$ and an equivalent height of $H = 44.7mm$. [1]

4.4 Rheological methods and procedures

The materials we intend to study call for specific precautions as they usually are time dependent, i.e. they generically show memory effects such as thixotropic or retarded viscoelastic behaviors. However, material properties must be time independent or at least temporally slowly varying, and cannot depend on the material shear history. Thus a prerequisite to determine the material properties is to obtain a steady state. It is very important to realize that a steady state, for a given material and rheological experiment, is defined as a state for which not only the shear stress and shear rate fields are constant, but also *all the internal viscoelastic and structural variables*. Thus, the only way of verifying the obtention of such a steady state is to check directly the absence of influence of previous shear history.

4.4.1 Procedure

4.4.1.1 Reversibility and steady state test

Before applying any rheometrical procedure, a reversibility/ steady state test is carried out on the material under study. This determines how a steady state can be obtained, and also how reversible the material is. Indeed, physical, chemical or biological phenomena (evaporation, settling, coalescence, ripening, bacterial growth...) always affect the material in amounts that need to be quantified.

Four identical creeps were applied (see figure Fig.4.4(a)), each creep lasting for one minute. This test was performed both above and below the yield stress. The first creep is used to reset the memory of the material. If it is long enough so that a steady state is obtained, the three next creeps should give identical results. This is indeed the case (see an example in figure Fig.4.4 (b) as

[1] The measurement of viscosity using the average factors defines an apparent viscosity of the material. It has been checked that the correction made in [17] for yield stress fluids does not change the behavior of the viscoelastic parameters.

for each material, the viscosity between the first and the third creep changes by 20% at most for one sample, value which we set as our arbitrary limit for reversibility.

Since all three creeps are identical (within our criterium), this means that the material properties are indeed independent of the material history, and thus that the initial creep was applied for a sufficiently long time so that a proper steady state was found.

Also, as the results are reproducible over the complete duration of the experiment, we consider that the samples of the materials used here were reversible, for experiments lasting no more than 1 hour (Fig.4.4(b)).

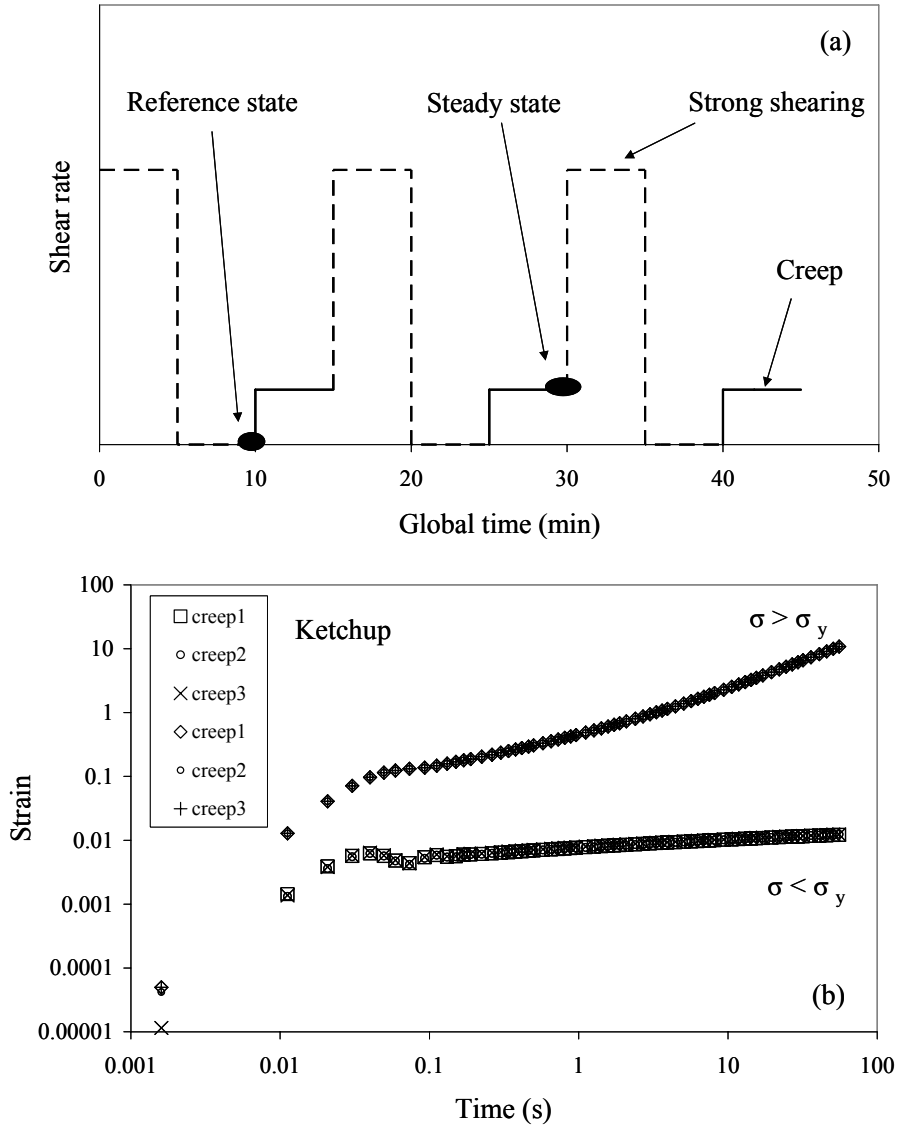


FIG. 4.4: *a)Reversibility test : three creeps applied for one sample of material, b)Response of three identical creeps applied for one sample of Ketchup for* $\sigma \prec \sigma_y$ *and* $\sigma \succ \sigma_y$

4.4.1.2 Reference state

Prior to any measurement, the material shear history is reset. For this, the strong shearing determined above is first applied to the material, which is then allowed to rest during 5 minutes, while the material's structure is reconstituted. The reference state corresponds to the state of the material at the end of the rest period (Fig.4.4(a)). We begin the rheometry procedure starting from this state.

4.4.1.3 Rheometry procedure

Successions of creep steps are used starting from the reference state. The duration of each creep is 1 minute. The first creep is applied starting from the 0 shear stress. For the next creep step, the stress is abruptly changed ($4Pa$ for Carbopol and Ketchup, and $2Pa$ for Xanthan) without stopping the vane rotation,...*etc* (see figure Fig.4.5 and figure Fig.4.1). The succession of creep experiments is applied in ramp-up (rise) and ramp-down (descent), to evaluate the temporal dependence of the material.

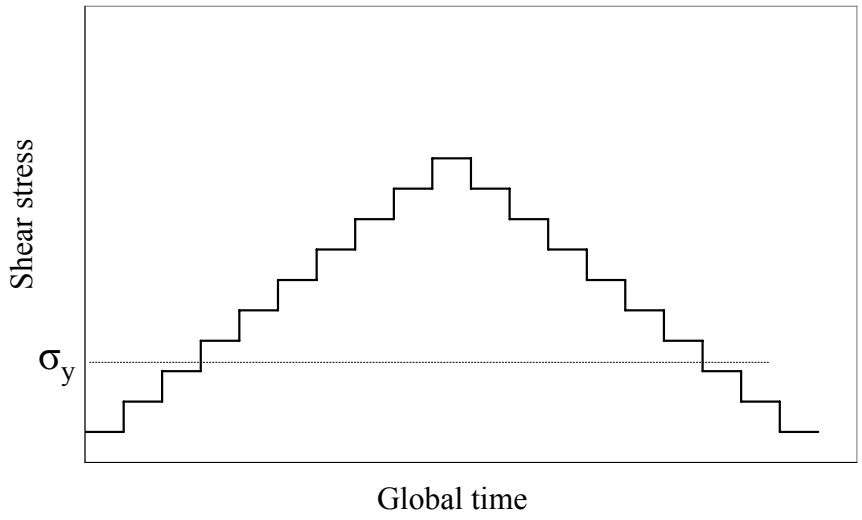


FIG. 4.5: *Procedure of characterisation*

4.4.2 Determination of the materials properties

4.4.2.1 Viscoelastic properties

The viscoelastic parameters (G, η_1, η_2) (which depend only on the stress) are determined by fitting the theoretical curve (Eq.4.6) to the experimental measurements (Fig.4.6) during the two first seconds for each creep, which is longer than the time necessary for the oscillations to dissipate.

For time scales smaller than 2 seconds , the material internal structure has not changed, while, for longer times, retarded viscoelasticity and/or thixotropic effects can occur.

Also, the usual steady state viscosity is determined at the end of each creep by calculating the ratio of the applied stress to the measured shear rate, averaged over a few seconds. To differentiate between the viscosity calculated from the Maxwell Jeffreys model (η_2) and this usual viscosity, we call the latter the "long time viscosity" ($\eta_{long-time} = \sigma/\dot{\gamma}$) .

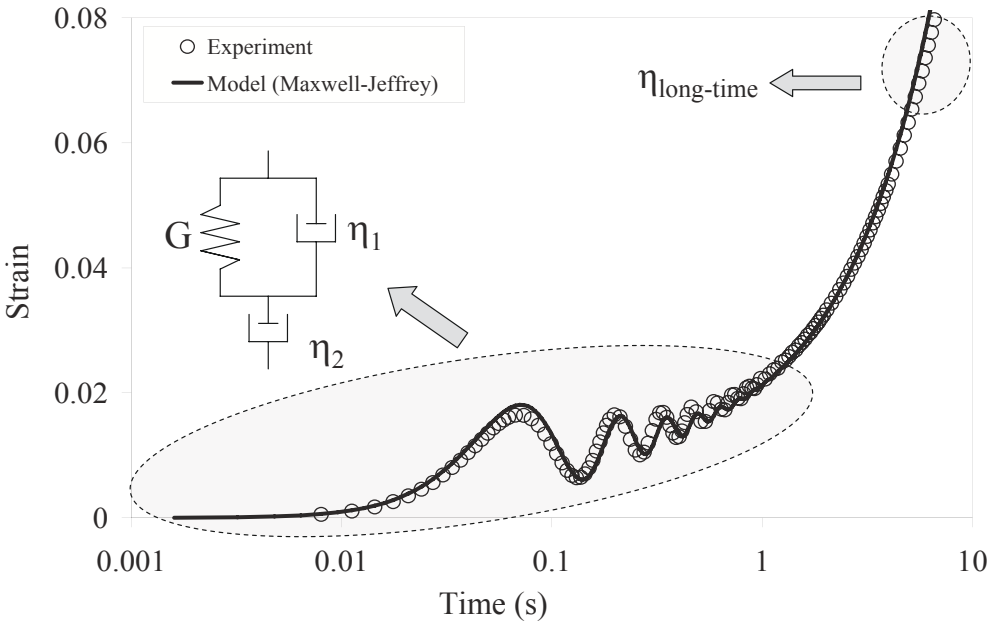


FIG. 4.6: *Creep experiment for a Carbopol 0.3% at 48Pa applied stress. This is the same curve as in figure. Fig.4.1. Adjustment of Eq.4.6 :* $G = 433,2Pa$, $\eta_1 = 1.7Pa.s$, $\eta_2 = 4143Pa.s$

4.4.2.2 Yield stress estimations

There are many definitions of the yield stress depending on the community of the writer, on the type of material studied and even on the performed experiments (stress versus strain-controlled experiments). Some even doubt its very existence (see eg. [2]). While we have no intention of refuelling this long-lived debate (see e.g. [37]), we recently showed that the concept of yield stress seems ill defined and is by no means universal [14]. As a consequence, we will use down-to-the-earth definitions of the yield stress. In the following, the yield stress is simply the stress above which we can detect apparent flow, the important words being here "detect" and "apparent". We evaluate the yield stress using the Maxwell Jeffreys model and also using the long time measurement.

For stresses lower than the yield stress, the material behaves like an elastic solid which means that a Kelvin-Voigt model is sufficient to describe this behavior. For stresses larger than the yield

stress, since the material flows, it is necessary to use a Maxwell-Jeffrey model to describe its viscoelastic behavior of the material. We define the "short time yield stress" as the stress at which it becomes necessary to use the Maxwell-Jeffrey model.

The "long time yield stress" was also estimated at the stress for which the long time viscosity $\eta_{long-time}$ becomes non-measurable. This instrumental detection limit with the used geometry occurs when the shear rate is smaller than $\dot{\gamma}_{limit-apparatus} = 10^{-6}s^{-1}$, which gives a limit of $\eta_{limite-apparatus} = 10^{6}Pa.s$. In practice, the long time yield stress is the stress at which the measured viscosity becomes larger than this apparatus limit. The difference between the short time and long time yield stresses is represented by the gray zone in figure Fig.4.7, figure Fig.4.8 and figure Fig.4.9.

Finally, it is clear that in both cases the definition is not absolute, but at least is objective, even though it depends on the quality of the instrument used for the experiments and on the duration of the measurement.

4.5 Results and discussion

We now present the results obtained from the analysis of the creep experiments for the three materials (Carbopol, Xanthan and Ketchup). As ramp up followed by ramp down creeps were performed, not only the steady state properties, but also the qualitative temporal behavior of the materials are described.

As the careful reader will have already noticed on figure Fig.4.6 and figure Fig.4.1, an important result of this study is that the elasticity of yields stress fluids does not disappear whatsoever above the yield stress. On those graphs, while the applied stress is more than twice the yield stress, the elastic modulus is clearly not zero as oscillations are observed at the beginning of creep ($\sigma_n = 48Pa$, $\sigma_{n-1} = 44Pa$), even though the material was already flowing during the previous creep (the tool is *not* stopped between the successing creeps). We will now expose in detail the results for each material, starting with the carbopol solution.

4.5.1 Carbopol 0.3%

Neutralized Carbopol solutions are known to be "model" yield stress fluids and their flow curves have been extensively studied in relation with the Yield Stress Controversy embodied in the papers by Barnes [2] and Piau [37]. Given our definitions, the short time yield and long time yield stress for Carbopol (Fig.4.7 c) are respectively 26 Pa and 16 Pa, which is a quite large difference (approximately 40%). This difference is similar to the one found when varying the duration of the creep steps

in [14]. This shows that the yield stress determined from the Kelvin-Voigt and Maxwell-Jeffreys models is as meaningful as the one deduced from the long-time viscosity.

When the applied stress is larger than 60 Pa (more than twice the yield stress), we observe a typical shear thinning fluid behavior, the viscosity η_2 decreasing by almost 3 orders of magnitude while the stress increases by 40 Pa. Interestingly, the short term and the long term viscosity are perfectly superimposed in this whole region, and are exactly the same in the ramp up or ramp down experiments. This shows clearly that this material bears no temporal dependence of its material properties in this region. In other words, it shows no thixotropy nor retarded viscoelasticity which explains partly why it is so commonly used in the industry. As soon as the applied stress is large enough the material loses any memory of previous shear history and behaves like a generalized Newtonian fluid.

The region between the yield stress and 60 Pa is very interesting also. It shows a plateau with the long term viscosity being the same on rise and descent, while the short term ramp up shows a significant difference. As the apparent viscosity seems to increase with time as stress is increased (ramp up), this cannot be explained by a thixotropic behavior. As there is no difference between the short and long time viscosities, this can neither be explained by retarded viscoelasticity. This behavior maybe due to shear localisation or fracturation at ramp up. For ramp down, as the material was already flowing it doesn't need to be fractured. This is consistent with the behaviour observed for carbopol by Bertola [66]. This shows that the quantity of embedded information in the creep experiments is quite remarkable and fairly easy to interpret.

Finally, the elastic modulus of the Carbopol solution under study is quite large at 250Pa i.e. roughly ten times the yield stress. As suggested above, figure Fig.4.7 (a) shows that the elasticity modulus G remains constant even under a stress much more important than the yield stress. This shows that the elasticity, far from disappearing when the material starts to flow, stays remarkably constant. This constancy may be traced down to its microscopic origin, suggesting that this material is build up from elastic microscopic objects as has been shown independently by Piau [37]. At the same time, figure Fig.4.7 (b) shows that the elastic dissipation η_1 is almost constant and even increases a little for strong stresses which is also compatible with the above microscopic description. However those results are incompatible with the usual vision of structured fluids as made of networks that are progressively broken by shear as the total elasticity of the system should decrease with increasing stress. It asks for more detailed investigations of the shear induced solid-liquid transition.

In conclusion, using the inertio elastic oscillations on successive creep experiuments allows to characterize in a very precise manner the viscoelastic properties of the Carbopol solution studied here.

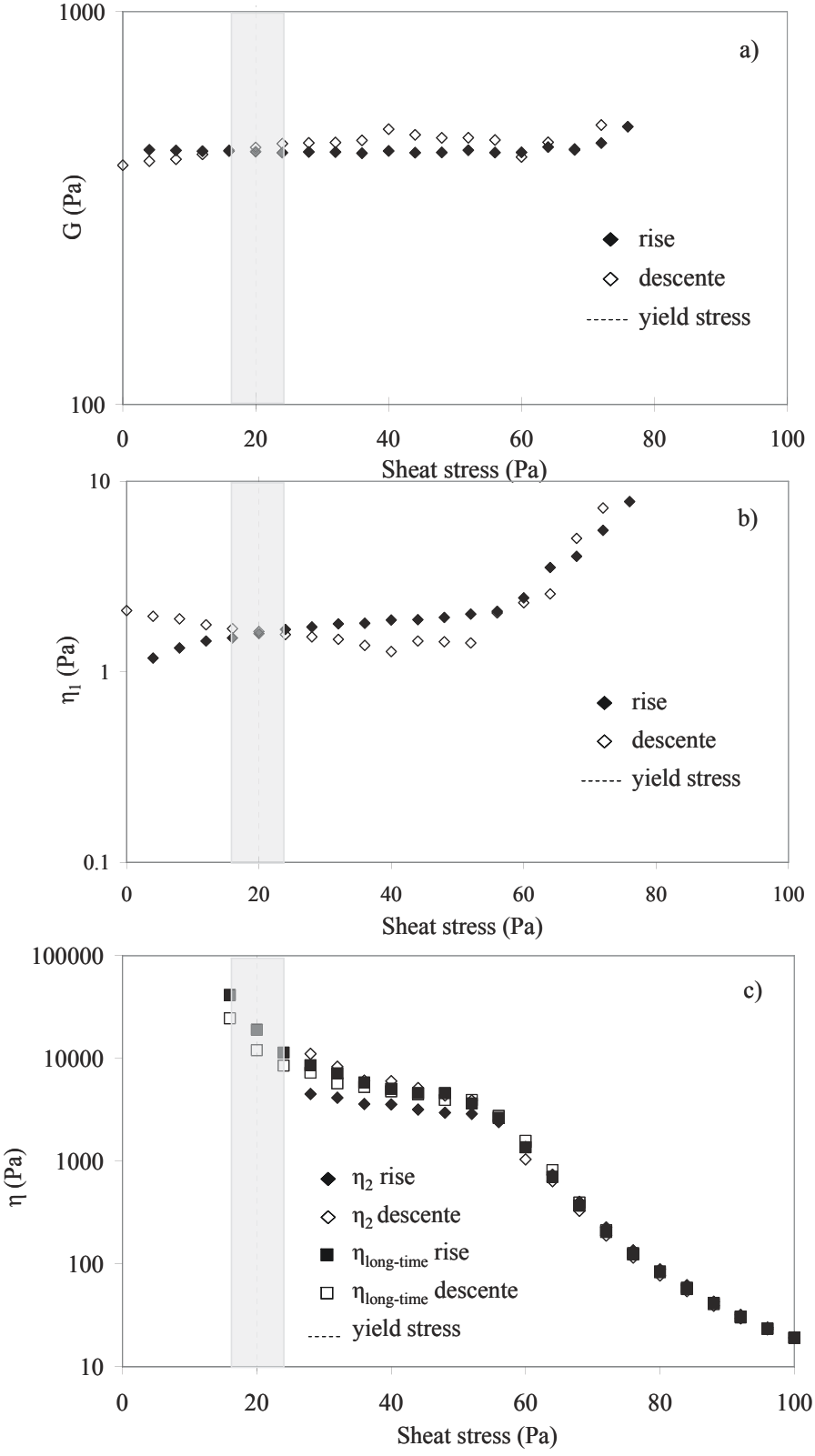


FIG. 4.7: *Successing creep in rise and descent for Carbopol 0.3% : a) Elastic modulus G, b)Elastic dissipation η_1, c)Viscosity η_2 and $\eta_{long-time}$ obtained at the end of creep*

4.5.2 Xanthan 2%

Since Xanthan is a natural product, it is very widely used in the food industry as a thickener. In the research community it is also used as a model material because of its birefringent properties. Although dilute solutions are known to be shear thinning, the concentrated suspension studied here clearly exhibits a yield stress comprised between 8 Pa (long-tim) and 13 Pa (short-time), once more a 40% difference. Like the carbopol, the behavior of Xanthan close to the yield stress is quite complex, but does not seem to show a plateau, i.e. shear localization or fracturation phenomena, in agreement with Song [34]. Xanthan is also a very shear thinning fluid as the viscosity decreases by 3 orders of magnitude while the stress increases by only 40 Pa.

Figure Fig.4.8 (c) shows that, unlike Carbopol, the different viscosity curves are not superimposed, which means that this material exhibits temporal evolutions. Indeed, for a given stress, the viscosity at short times η_2 is larger than the viscosity at long times $\eta_{long-time}$ in rise, and the viscosity at short times η_2 is smaller than the viscosity at long times $\eta_{long-time}$ in descent. Further, viscosities at long time respectively at the rise and the descent tend to the same value. This clearly indicates a thixotropic character of the xanthan solution, the viscosity at the begining of the step being higher (smaller) than the long time viscosity for rise (descent) experiments. The creep lasting for a minute, we can deduce that the thixotropy time is smaller than this, probably of a few tens of seconds. This behaviour could be analysed in detail by using the creep curves, but is outside the scope of this article. Concerning its viscoelastic properties, figure Fig.4.8 (a) shows, once more, that the elasticity modulus G remains constant even under a stress much more important than the yield stress. Figure Fig.4.8 (b) shows that the elastic dissipation η_1 is almost constant and increases a little for increasing stresses. This suggests again that this material is made of fairly large blobs that slowly deform and orient under stress.

4.5.3 Ketchup

Ketchup is a very interesting material as it is very often used to demonstrate the interplay between yield stress and thixotropy effects. Figure Fig.4.9 c) shows clearly that Ketchup have a yield stress, albeit quite small as we found that it lies between 4Pa and 9Pa (long-time and short-time respectively). Unlike the two previous materials, its behavior close to the yield stress is straightforward and uncomplicated. It is also a shear thinning material, as its viscosity decreases by 2 orders of magnitude while the stress increases by 60 Pa.

Its temporal behavior is quite different from the two situations encountered previously. Indeed, the viscosity at short times η_2 in rise is the same as in descent. Similarly, the viscosity at long times η_2 in rise is the same as in descent. Thus, the Ketchup used in this study is not thixotropic.

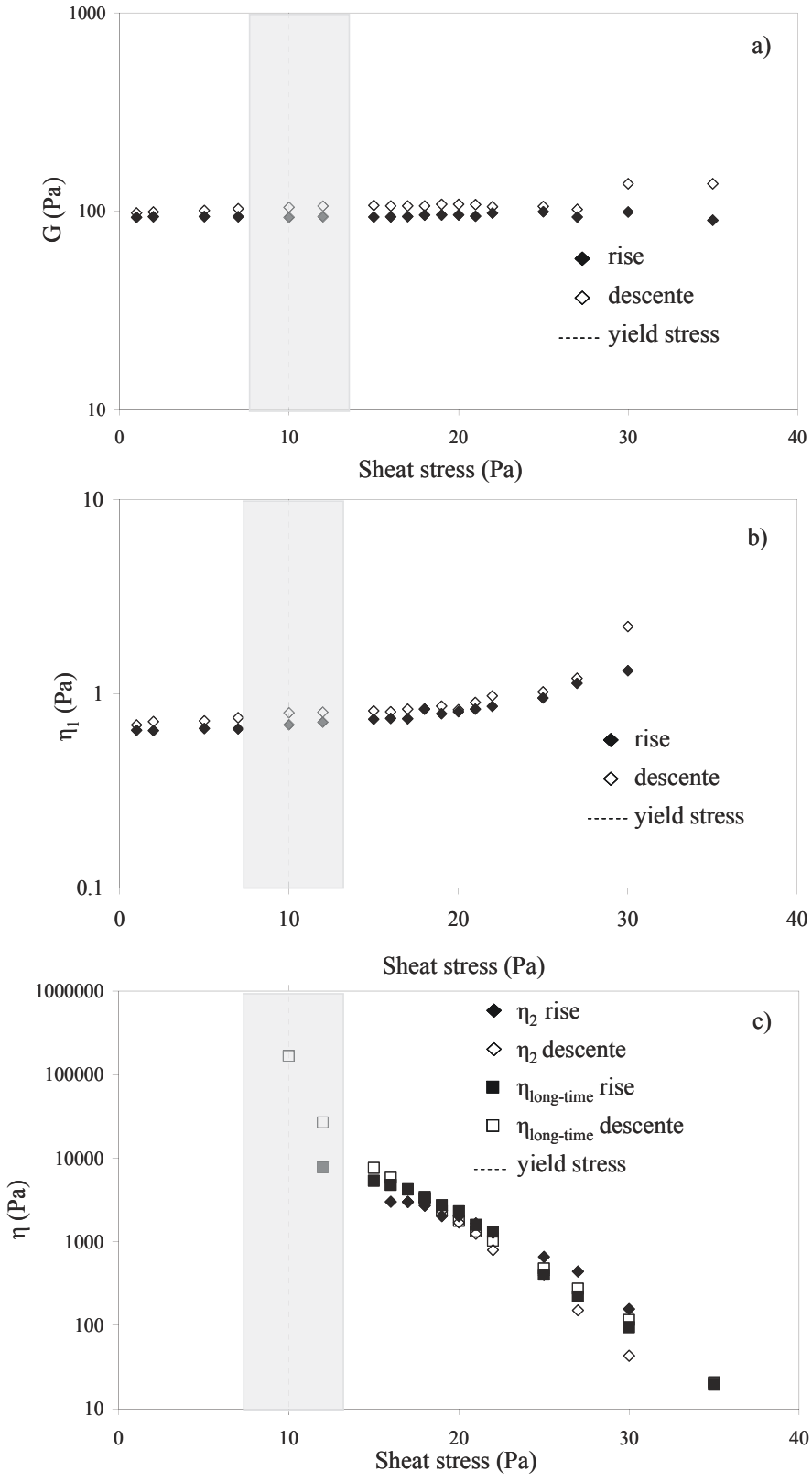


FIG. 4.8: *Successing creep in rise and descent for Xanthan 0.2% : a) Elastic modulus G, b)Elastic dissipation η_1, c)Viscosity η_2 and $\eta_{long-time}$ obtained at the end of creep*

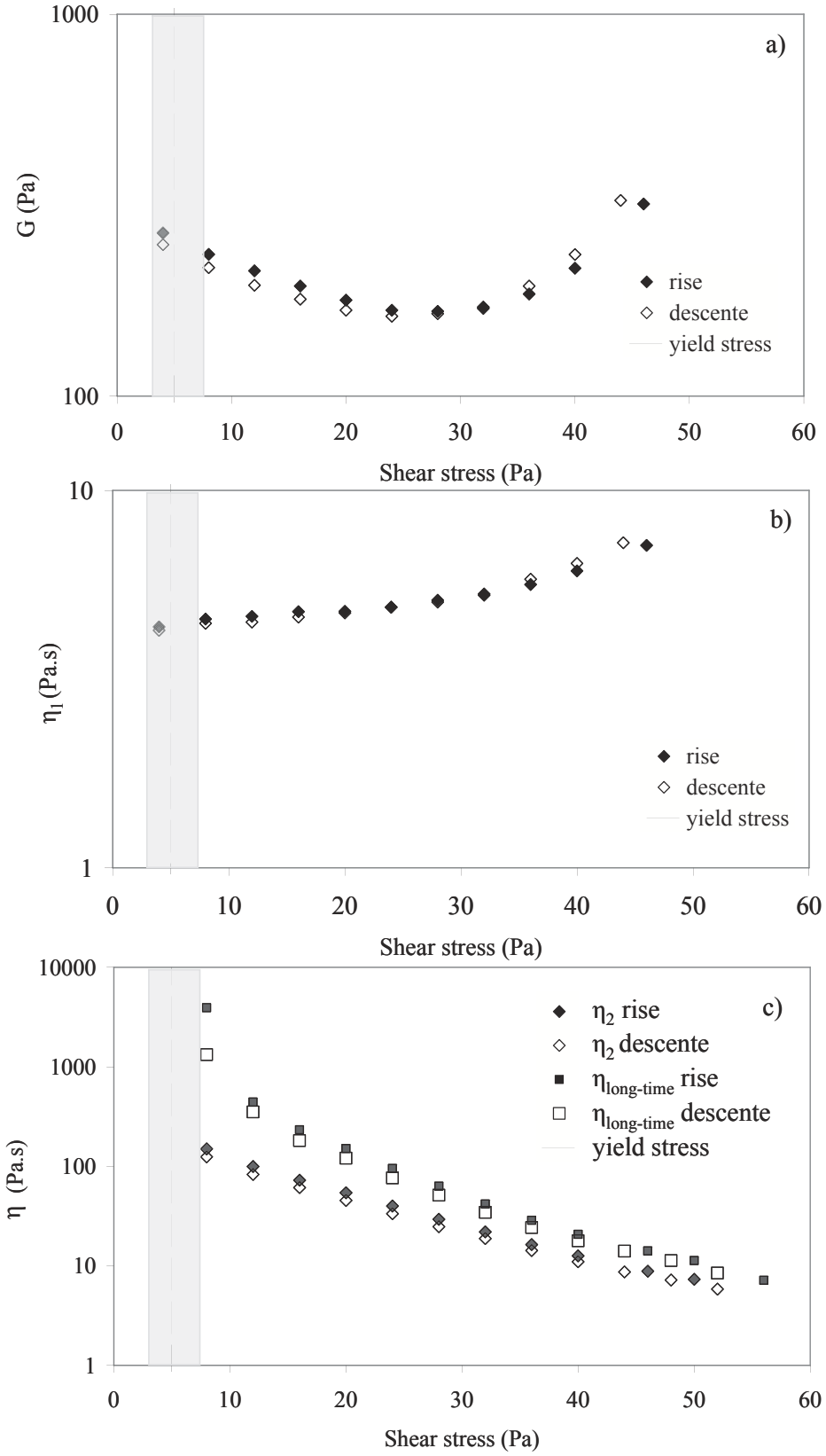


FIG. 4.9: *Successing creep in rise and descent for Ketcup : a) Elastic modulus G, b)Elastic dissipation η_1, c) Viscosity η_2 and $\eta_{long-time}$ obtained at the end of creep*

However, it is clear in figure Fig.4.9 (c) that the viscosity at short times η_2 is always smaller than viscosity at long times $\eta_{long-time}$ in both rise and descent. This can be interpreted as a retarded (slow) viscoelastic behaviour. Its time scale is clearly larger than the viscoelastic characteristic time ($t \succ \eta_2/G$) accessible with the Maxwell-Jeffrey model. This effect of retarded viscoelasticity will always lead to on underestimation of the viscosity η_2 both for rise and descent experiments.

Finally figure Fig.4.9 (a) and (b) shows respectively that the elasticity modulus G and the elastic dissipation η_1 change little even under a stress much more important than the yield stress.

4.6 Conclusions

First, the simple shear viscoelastic properties of three different yield stress materials was determined unambiguously, using the creep mode of control stress rheometers and an appropriate modelling of the interaction between the viscoelasticity of the material and the rheometer's inertia. The first result of this study is that the elastic modulus and the elastic dissipation of those yield stress fluids stay almost constant for applied stresses up to several times larger than the yield stress. The second result is that this method allows to determine a yield stress which is reasonable while showing clearly that such a concept is not absolute, but experiment dependent.

Another very strong asset of this method is that the viscoelastic determination is almost instantaneous. Indeed, only a few oscillations are needed, which usually amount to one second. Thus this method allows in a very straightforward fashion to observe directly the temporal behavior of those materials by comparing the measured viscosities at (at least) two different times. So, it allows to discriminate unambiguously between thixotropic, retarded viscoelastic and inhomogeneous (fracturing) behaviors.

As such, it appears to be the tool of choice to study those yield stress materials, and to investigate in more detail the shear induced solid liquid transition.

Deuxième partie

Ecoulements dans des géométries à cylindres centrés et éxcentrés

Cette deuxième partie de thèse concerne l'étude de l'écoulement des matériaux précédemment caractérisés, entre deux cylindres coaxiaux à entrefer large. En particulier nous chercherons à confronter les mesures de rhéométrie classique à la loi de comportement déduite des expériences en entrefer large pour différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant, et fortement rhéofluidifiant. En outre, des simulations numériques sur Fluent ont été effectuées afin d'étudier la prédiction de ces écoulements avec les modèles classiques.

"Qui s'y frotte s'y pique"

Cette devise de la Lorraine fut apportée par le duc de Lorraine René II, suite à la mort de Charles le Téméraire en 1477 pendant la bataille de Nancy.

Chapitre 5

Bibliographie sur l'écoulement entre deux cylindres

Le comportement des fluides dans des dispositifs confinés comme l'écoulement entre deux cylindres, deux cônes, ou encore deux sphères, sont très étudiés en mécanique des fluides. L'écoulement entre deux cylindres coaxiaux a généré plus de 2000 articles depuis celui de M. Couette. De par sa simplicité, ce système possède une riche variétés de régimes d'écoulement : laminaire (écoulement de base), instabilités, chaos. Les modes de transition entre ces régimes d'écoulement dépendent des vitesses de rotation des deux cylindres, des caractéristiques géométriques du système (rapport des rayons, rapport d'aspect), et des propriétés du fluide utilisées (viscosité, élasticité, contrainte seuil, ...).

Dans ce qui suit, nous résumons les différents travaux effectués sur la géométrie de Couette (cylindres coaxiaux), ainsi que ceux effectués sur la géométrie de cylindres excentrés.

Sommaire

5.1 Description du système de Couette 111

5.2 Histoire de la géométrie de Couette et régimes d'écoulement de Couette-Taylor pour un fluide newtonien 112

5.3 Régimes d'écoulement de Couette-Taylor pour un fluide viscoélastique 115

5.4 Écoulements entre deux cylindres excentrés 118

5.5 Situation présente du problème (notre étude) 123

5.1 Description du système de Couette

La géométrie de Couette est constituée de deux cylindres coaxiaux de rayons : intérieur R_i, extérieur R_e, et de hauteur L. Elle possède deux paramètres géométriques sans dimension à savoir (Fig.5.1) :

- Le rapport des rayons : R_i/R_e, ou la courbure : $\epsilon = e/R_i$
- Le rapport d'aspect : $\Gamma_p = L/e$

e étant l'entrefer : $e = R_e - R_i$.

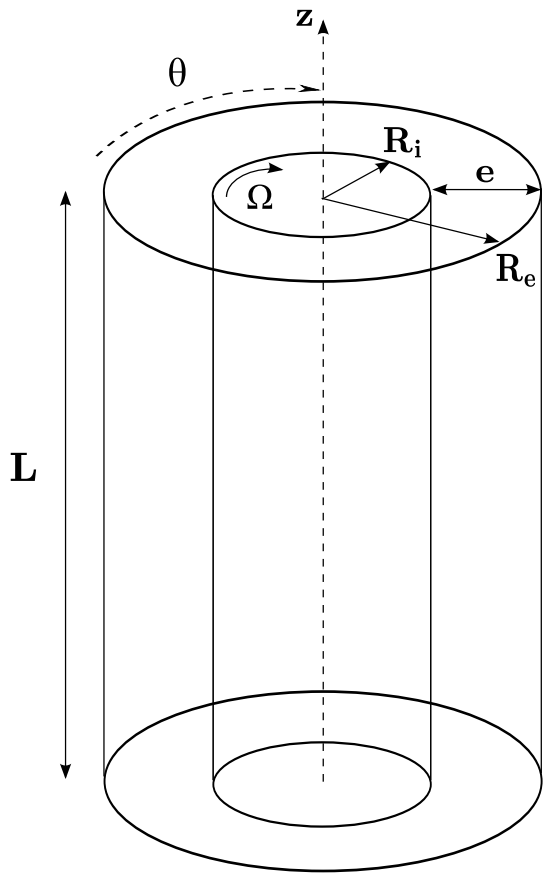


FIG. 5.1: *Géométrie de Couette : cylindres coaxiaux*

La rotation des deux cylindres (ou l'un des deux) provoque l'écoulement du fluide contenu entre ces deux. Cette géométrie possède plusieurs symétries spatiales et temporelles :

- symétrie de translation le long de l'axe des cylindres : $z \rightarrow z + \delta z$
- symétrie de réflexion par rapport à un plan perpendiculaire à l'axe des cylindres : $z \rightarrow -z$
- symétrie de rotation autour de l'axe des cylindres : $\theta \rightarrow \theta + \delta\theta$
- symétrie de réflexion du sens de rotation : $\theta \rightarrow -\theta$
- symétrie de translation temporelle : $t \rightarrow t + \delta t$

L'écoulement isotherme d'un fluide incompressible est gouverné par les équations de la conservation de la quantité de mouvement avec la condition d'incompressibilité (Équations de Navier-Stokes) :

$$\nabla.\mathbf{v} = 0$$
$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = -\frac{1}{\rho}\nabla\left(p.\mathbf{I} + T\right) + g \tag{5.1}$$

où p est la pression, I le tenseur identité, et $\sigma = -p\mathbf{I} + T$ est le tenseur des contraintes.

5.2 Histoire de la géométrie de Couette et régimes d'écoulement de Couette-Taylor pour un fluide newtonien

La géométrie de deux cylindres coaxiaux porte le nom de Maurice Couette, le premier chercheur qui a utilisé ce système, en 1884, son but étant de mesurer la viscosité des fluides. Il faisait tourner le cylindre extérieur et mesurait la valeur du couple subi par le cylindre intérieur suspendu par un fil de torsion. Il constata que la viscosité reste constante tant que la vitesse de rotation ne dépasse pas une valeur critique ; il s'agit de l'écoulement circulaire de base : régime laminaire . Quatre ans plus tard, A. Mallock (1888) observa des caractéristiques similaires en faisant tourner le cylindre intérieur. En 1890, Couette [67] remarqua que dans la situation où le cylindre intérieur tourne et le cylindre extérieur reste fixe, les conditions de vitesse pour lesquelles le mouvement du fluide peut être considéré comme purement circulaire, sont plus restritives que dans le cas du cylindre extérieur mobile. Le phénomène rencontré dans ces expériences ne fut pas alors expliqué par ces premiers auteurs.

En 1916, Lord Rayleigh établit le critère de stabilité de l'écoulement circulaire entre deux cylindres en rotation différentielle, connu sous le nom de « critère de Rayleigh » [68, 69].

Il a fallu attendre 1923 pour que G. I. Taylor montre théoriquement et expérimentalement que l'écoulement de Couette circulaire peut subir une instabilité provoquée par la stratification du moment cinétique, si la vitesse de rotation du cylindre excède une certaine valeur critique Ω_{c1} [70]. Il observa dans l'écoulement de Couette un motif sous forme de rouleaux contrarotatifs stationnaires axisymétriques, empilés verticalement, appelés par la suite *rouleaux* ou *vortex de Taylor*. Les rouleaux de Taylor toriques contrarotatifs s'étendent tout autour du cylindre où les trajectoires des éléments de fluides s'enroulent sous forme de tores. Dans cette première instabilité, l'écoulement présente des structures périodiques et uniformes dans la direction axiale.

Lorsque la vitesse de rotation excède une deuxième valeur critique Ω_{c2}, le régime des rouleaux de Taylor stationnaires axisymétriques bifurque vers un écoulement formé de rouleaux ondulés oscillants, ce régime est dit de *Wavy* ou *vortex de dédoublement de période* car il possède une

périodicité dans l'espace (direction axiale et azimutale) et dans le temps (bifurcation de Hopf). Cette transition vers une deuxième instabilité a été notamment étudiée par Sobolic [71], et par Coles en 1965 [72], qui a analysé finement les états de l'écoulement dans son appareil (rapport de rayon de 0.88) à partir de photographies. Coles a montré que les motifs du régime de Wavy se déplacent avec une vitesse uniforme dans la direction azimutale, la vitesse tangentielle de l'onde de Wavy devient constante pour de grandes vitesses du cylindre intérieur. Bouabdellah et Cognet [73], Fenstermacher [74] ont confirmé et discuté le résultat trouvé par Coles. En 1984, King a étudié numériquement la stabilité de l'écoulement de Couette-Taylor en utilisant une méthode spectrale [75]. Bien d'autres auteurs comme DiPrima [76] et Reichelmann [77], ont effectué des simulations numériques sur cet écoulement ; les résultats obtenus concernant l'instabilité de cet écoulement sont en bon accord avec leur expérience et celles de Coles. Avec le développement, dans les trente dernières années, de nouvelles techniques de visualisation et de mesure, la périodicité spatio-temporelle et le champ de vitesse du régime de Wavy ont été mesurés par plusieurs auteurs. Ces divers travaux expérimentaux montrent que l'onde du régime des Wavy possède une périodicité parfaite d'où une fréquence unique f_1.

Lorsque la vitesse de rotation du cylindre intérieur excède une troisième valeur critique Ω_{c3}, le motif des rouleaux ondulés bifurque vers le régime turbulent. Dans sa thèse, Bouabdellah a étudié l'écoulement de Couette-Taylor avec trois rapports de rayon différents (0.95, 0.91 et 0.82).

Dans le cas de l'écoulement de Couette-Taylor en contrarotation, d'autres auteurs on étudié ce cas comme Chaté [78] ou Calovas [79] Dans sa thèse, Latrache [80] a étudié les différents régimes pour le même rapport de rayons 0.883 et un nombre de Reynolds extérieur $R_0 = -622$. Selon les valeurs de R_i, il a observé différents régimes lors des transitions de l'écoulement circulaire de Couette jusqu'au régime du chaos spatio-temporel, en passant par les régime de spirales (SPI), de spirales interpénétrantes (IPS) et de spirales ondulées (WIS).

Par la suite, l'écoulement de Couette a fait l'objet de nombreux travaux théoriques numériques et expérimentaux, parce qu'il sert de système-modèle en hydrodynamique et joue un rôle important dans plusieurs applications industrielles.

5.2.1 Critère de Rayleigh

La perte de stabilité de l'écoulement de Couette circulaire donne naissance à un mouvement secondaire qui se superpose à l'écoulement moyen. Un critère de stabilité est donné par Rayleigh [68], dans le cas général d'un écoulement courbe d'un *fluide parfait* [1] : « une condition nécessaire et suffisante de stabilité vis-a-vis des perturbations dans ce cas, est que le carré de la circulation

[1] Un fluide est dit parfait s'il n'oppose aucune résistance à l'écoulement

(r^2v^2) croisse en s'éloignant du centre de courbure ».

Dans le cas de cylindres coaxiaux tournants aux vitesses Ω_1 et Ω_2, cette condition se traduit par :

$$\Omega_2 R_2^2 - \Omega_1 R_1^2 \succ 0 \tag{5.2}$$

Dans le cas où seul le cylindre intérieur tourne ($\Omega_2 = 0$), l'écoulement se destabilise dès la mise en mouvement $\Omega_1 \succ 0$, le cas contraire ($\Omega_1 = 0$, $\Omega_2 \succ 0$) donne lieu à un mouvement stable de nature.

Ce critère se trouve modifié en présence de la viscosité, qui a pour effet de retarder l'apparition des instabilités. En effet, tous les fluides courants possèdent une viscosité non nulle et leur écoulement s'accompagne de dissipation visqueuse. Une compétition s'installe alors entre les effets de la dissipation visqueuse et ceux de la stratification du moment cinétique.

5.2.2 Influence du rapport d'aspect

La longeur finie des cylindres affecte l'écoulement à cause de la tension superficielle de la surface libre du fluide (dans le cas de l'écoulement de Couette à surface libre), et/ou à cause des écoulements secondaires qui peuvent apparaître près des bases des cylindres connus sous le nom de *cellules d'Ekman*. Ainsi l'écoulement est affecté par la brisure de la symétrie de translation. En 1969, Snyder [81] a utilisé différentes géométries finies (i.e. différentes valeurs du rapport d'aspect : $\Gamma_p = \frac{L}{e}$), il a montré que le mouvement du fluide fait apparaître des cellules d'Ekman adjacentes aux extrémités en circulation non horizontale. Ces cellules se présentent sous forme de deux vortex d'intensité relativement faible et dont la longueur peut s'étendre des extrémités pour de grands rapports d'aspect jusqu'au milieu du système pour des petits rapports d'aspect. Enfin, lorsque $\Gamma_p \ll 1$, on peut considérer que la géométrie est infinie.

5.2.3 Equation de l'écoulement de base

Les équations qui gouvernent l'écoulement d'un fluide isotherme et incompressible sont les équations de Navier-Stokes qui traduisent la conservation de la quantité de mouvement et la continuité (Eq.5.1). Pour un fluide newtonien, le tenseur des contraintes est proportionnel au tenseur des déformations, il s'écrit sous la forme :

$$\overline{\overline{T}} = -2\rho.\nu.\overline{\overline{D}}$$

où :

ρ est la masse volumique du fluide,

ν est la viscosité cinématique du fluide,

$\overline{\overline{D}} = 1/2\left(\overline{\overline{\nabla}}v + \left(\overline{\overline{\nabla}}v\right)^T\right)$ est le tenseur des taux de déformation.

Pour un système de Couette à grand rapport d'aspect ($\Gamma_p \succ\succ 1$) et à faibles nombres de Reynolds, les effets de bords dus à la couche d'Ekman sont confinés dans une région proche des bords et peuvent donc être négligés. L'écoulement de base est laminaire ; homogène suivant z, ne possède pas de vitesse axiale ni radiale ($v_r = v_z = 0$), est stationnaire et axisymétrique. La résolution de l'équation Eq.5.1 avec les conditions aux limites à $r = R_i$ ($v_\theta(R_i) = \Omega R_i$) et à $r = R_e$ ($v_\theta(R_e) = 0$) donne le profil de vitesses de l'écoulement laminaire du fluide newtonien qui s'écrit sous la forme :

$$v_\theta(r) = A.r + \frac{B}{r} \tag{5.3}$$

Où A et B sont des constantes d'intégration. Le profil de vitesses comporte une seul direction (azimutale) et ne dépend que de la composante radiale.

5.3 Régimes d'écoulement de Couette-Taylor pour un fluide viscoélastique

5.3.1 Caractéristiques de l'écoulement

Dans le système de Couette viscoélastique, le tenseur de contrainte en coordonnées cylindriques a la forme :

$$\overline{\overline{\sigma}} = \begin{pmatrix} \sigma_{rr} & \sigma_{r\theta} & \sigma_{rz} \\ \sigma_{r\theta} & \sigma_{\theta\theta} & \sigma_{\theta z} \\ \sigma_{rz} & \sigma_{\theta z} & \sigma_{zz} \end{pmatrix}$$

Les valeurs des trois contraintes normales : σ_{rr}, $\sigma_{\theta\theta}$ et σ_{zz} sont différentes, cet effet d'anisotropie conduit à les caractériser par les deux contraintes N_1 et N_2.

$$N_1 = \sigma_{\theta\theta} - \sigma_{rr} \tag{5.4}$$

$$N_2 = \sigma_{rr} - \sigma_{zz} \tag{5.5}$$

On définit la première contrainte normale : N_1 qui est la différence entre la contrainte normale dans la direction de l'écoulement et celle dans la direction du gradient de vitesse. La deuxième contrainte normale : N_2 qui est la différence entre la contrainte normale dans la direction du gradient de vitesse et celle dans la direction neutre. De façon générale les contraintes normales sont nécessairement des fonctions paires du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, les premiers termes non nuls de

leurs développement seront donc des termes en $\dot{\gamma}^2$ [2] [5]. Il en sera de même pour leurs différences normales N_1 et N_2

Le nombre de Reynolds critique est défini par :

$$\Re_e = \frac{t_\nu}{t_a} \tag{5.6}$$

avec : $t_\nu = \frac{\rho e^2}{\eta(\dot{\gamma})}$ est le temps de diffusion visqueuse dépendant du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, et $t_\nu = \frac{e}{\Omega R_i}$ est le temps d'advection dans la direction azimutale.

On introduit le nombre de Weissenberg, calculé à partir du temps de relaxation de la solution :

$$We = t_{v.e.}.\dot{\gamma} \tag{5.7}$$

$t_{v.e.}$ étant le temps de relaxation de la solution.

On peut également construire le nombre élastique qui est le rapport des effets élastiques sur les effets inertiels, ou bien le rapport du temps de relaxation sur le temps de dissipation visqueuse :

$$E = \frac{We}{\Re_e} = \frac{t_{v.e.}}{t_\nu} \tag{5.8}$$

Les fluides viscoélastiques sont généralement obtenus par l'ajout d'un polymère à longues chaînes moléculaires dans un solvant newtonien. Soumise à un cisaillement, la solution obtenue présente des comportements non newtoniens comme la rhéofluidification ou l'apparition de différences de contraintes normales induites par l'allongement des macromolécules dans l'écoulement. Ces propriétés viscoélastiques modifient la nature et les caractéristiques des instabilités (régimes d'écoulement) observées pour un fluide newtonien.

Dans ce qui suit, nous résumons les travaux antérieurs sur les instabilités dans le système de Couette-Taylor avec des liquides viscoélastiques. Les travaux sur l'écoulement de Couette-Taylor viscoélastique se sont intéressés à caractériser l'influence de la viscoélasticité sur la première instabilité. Lorsque le cylindre extérieur est au repos, on a distingué essentiellement trois types d'instabilité selon le nombre élastique E du fluide viscoélastique : pour de faibles valeurs de E l'instabilité est de nature inertielle ; pour des valeurs moyennes de E, l'instabilité est de nature inertio-élastique ; pour de grandes valeurs de E, l'instabilité est de nature purement élastique.

5.3.2 Instabilité inertielle

Lorsque le nombre élastique E est très petit, la nature de la première instabilité est la même que celle observée pour un fluide newtonien (rouleaux de Taylor : écoulement stationnaire et périodique dans la direction axiale). Cependant, le nombre de Taylor critique et le nombre d'onde

[2] Les différences de contraintes normales peuvent être proportionnelles à $|\dot{\gamma}|$ dans certains cas très spéciaux comme les cristaux liquides [5] et certaines émulsions [82]

sont différents. En 1969, les travaux de Ginn et Denn [83] ont prédit, avec un modèle de fluide du second ordre [3], la stabilisation dans le cas d'une faible viscoélasticité (faibles concentrations). Cette stabilisation est traduite par l'augmentation du nombre de Taylor critique accompagnée par la diminution du nombre d'onde (augmentation de la taille des rouleaux). L'expérience de Beavers et Joseph [84] avec des solutions de polyacrilamide dans un mélange eau-glycerole a mis en évidence une forte diminution (jusqu'à un facteur 3) du nombre d'onde. D'autres auteurs, comme Karlson et Sokolov, ont montré que la faible viscoélasticité induisait une stabilisation et une diminution du nombre d'onde pour les solutions de faibles concentrations de polymère.

5.3.3 Instabilité inertio-élastique

Lorsque le fluide possède un nombre élastique E moyen, les effets élastiques et inertiels sont comparables. Ce régime est situé entre les zones de faible et de forte élasticité. Dans ce cas, la première instabilité n'est plus purement inertielle. On observe un motif formé d'ondes spirales, des rubans ou, de manière générale, des modes non-axisymétriques instationnaires. Ce régime est le résultat d'une instabilité inertielle modifiée par l'élasticité, ce qui permet d'observer des modes instationnaires. Groisman et Steinberg [85] ont caractérisé la transition entre le régime inertiel, où la force centrifuge est le moteur de la déstabilisation, et le régime élastique. Pour des valeurs de E inférieures à $E_c \approx 0.22$, ils ont observé des rouleaux de Taylor comme premier mode d'instabilité avec des nombres de Taylor presque constants et sans modification du nombre d'onde axial (instabilité inertielle). Le deuxième mode est sous forme de deux spirales contrapropagatives superposées de même amplitude, et le troisième mode est sous forme de deux spirales contrapropagatives d'oscillations désordonnées, ces deux derniers modes sont des instabilités inertio-élastiques. Un régime comparable a été observé par Baumer et Muller [86]. La déstabilisation observée pour des solutions de concentrations plus élevées, accompagnée d'un comportement complexe du nombre d'onde, permet de déduire que la rhéofluidification joue un rôle déstabilisant sur l'écoulement. Les travaux numériques de Avgousti [87] basés sur le modèle d'Oldroyd-B et de Maxwell, ont montré que les instabilités inertio-élastiques les plus instables sont des modes oscillants non-axisymétriques. Les travaux de Crumeyrolle [88], en utilisant différentes concentrations de polyoxyéthylène, ont montré que pour de faibles concentrations, on peut retarder (stabiliser) l'apparition de l'instabilité dans l'écoulement de Couette jusqu'à des valeurs du nombre de Taylor de 10 à 15 % supérieures à la valeurs critique pour un écoulement newtonien, et que les effets élongationnels pourraient être à l'origine de ce comportement. Avec des concentrations plus importantes, ils ont montré qu'on pou-

[3] Un fluide du second ordre est un fluide de Type Oldroyd-B dont le temps de relaxation est nul et où la deuxième différence normale est très faible[4]

vait destabiliser l'écoulement de Couette circulaire vers des régimes plus complexes, voire quasi turbulents, donc plus mélangeants. Enfin, la stabilité des solutions viscoélastiques est sensible à la présence d'agrégats et aux perturbations thermiques.

5.3.4 Instabilité élastique

Lorsque le nombre élastique E du fluide est important, le premier mode observé est sous forme d'oscillations très désordonnées. Ce régime est le résultat d'une instabilité purement élastique. Les effets élastiques dominent sur les effets inertiels. Les instabilités purement élastiques ont été observées par Larson et *al* [89] en 1990, à travers leurs expériences sur du polyiosobutylène de concentration de 1000 *ppm*. Il ont constaté que ces instabilités élastiques apparaissent déjà à de très faibles nombre de Taylor $Ta = 10^{-6}$ (pour $D_e \approx 20$ et $\epsilon = 0.14$), et elles sont sous forme de rouleaux irréguliers. Les résultats théoriques étaient en accord avec leurs expériences. Ces dernières, faites par les mêmes auteurs avec des solutions de type liquide de Boger [4], non rhéofluidifiants dans des solvants très visqueux (de 100 à 1000 fois la viscosité de l'eau) ont montré que la viscoélasticité induit des modes d'instabilité différents du mode stationnaire et axisymétrique des rouleaux de Taylor [89]. Groisman et Steinberg [85] ont montré, pour les solutions à grand nombre élastique E que la première instabilité est sous forme d'ondes radiales se propageant avec une fréquence f. La deuxième instabilité apparait brutalement sous forme d'oscillations désordonnées, la fréquence des spirales de transition est proche des valeurs de fréquences trouvées par les prédictions théoriques sur les instabilités purement élastiques faites par Larson [89]. D'autres travaux théoriques ont confirmé l'existence de l'instabilité purement élastique formée de modes non-axisymétriques dans l'écoulement de Couette-Taylor viscoélastique [90, 91, 92] .

Dans le schémas de la figure Fig.5.2, nous pouvons schématiser l'effet du nombre élastique sur le comportement du fluide viscoélastique par rapport à celui d'un fluide newtonien, dans une géométrie de Couette de courbure ϵ. Selon la valeur du nombre élastique E, la première instabilité peut apparaître à un nombre de Taylor plus grand (pour E petit) ou plus petit (pour E grand) que le nombre de Taylor critique d'un fluide newtonien. De plus, suivant la valeur de E et de Ta, la nature de l'instabilité est différente.

5.4 Écoulements entre deux cylindres excentrés

Le mouvement des fluides entre deux cylindres excentrés attire de plus en plus l'attention du monde scientifique. On rencontre ce problème dans plusieurs applications industrielles comme par exemple dans les machines tournantes [93]. Des études plus académiques suscitent l'objet de l'étude

[4] Un liquide Boger est un liquide viscoélastique non rhéofluidifiant

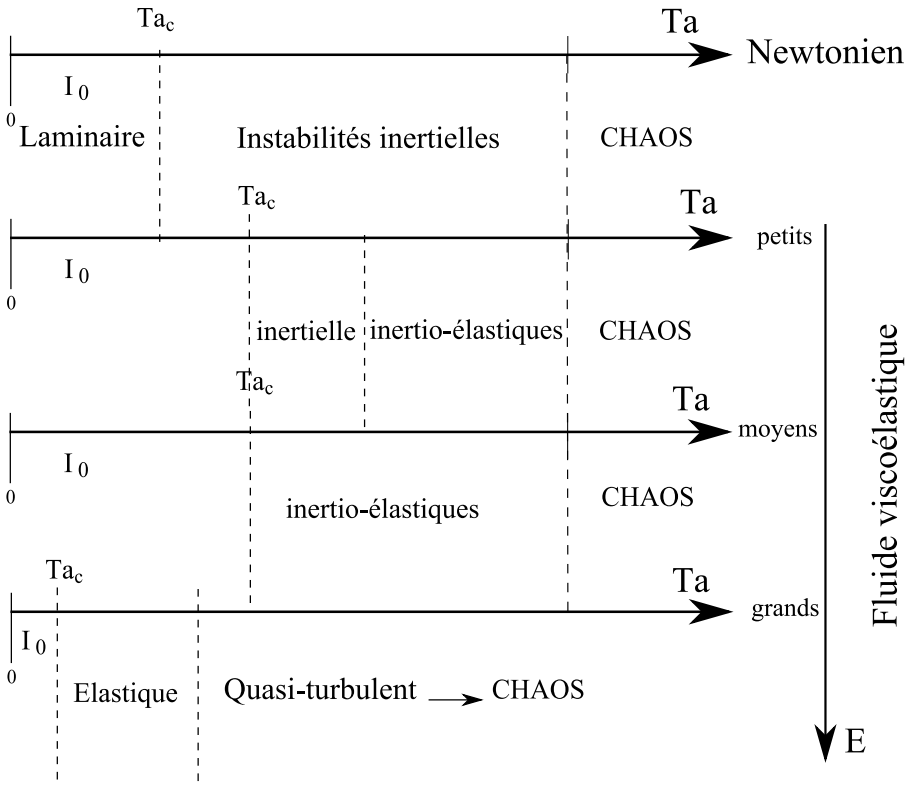


FIG. 5.2: *Nature des instabilités observées dans l'écoulement de Couette-Taylor viscoélastique*

de mélanges des liquides très visqueux [94], dans cette géométrie. La plupart concernent les très grandes excentricités : *Journal of Bearing*.

Cette géométrie est caractérisée notamment par l'excentricité $\delta = \frac{d}{R_i}$ (Fig.5.3) qui, lorsque cette dernière est nulle, fait que l'écoulement se réduit à un écoulement de Couette-Taylor dans lequel l'existence des instabilités est bien connue. L'excentricité δ constitue un paramètre géométrique de plus, qui peut rendre l'écoulement plus complexe et contribuer à la génération d'écoulements secondaires.

Si les travaux numériques sur les écoulements entre cylindres excentrés sont nombreux, les travaux expérimentaux sur les propriétés de ces écoulements restent très rares. L'objectif de ces études est de comprendre l'effets du paramètre de l'excentricité δ sur le comportement du fluide, notamment sur l'écoulement circulaire de Couette, et sur la première instabilité de l'écoulement de Couette-Taylor.

5.4.1 Fluides newtoniens

La stabilité des fluides newtoniens en écoulement entre deux cylindres excentrés a été étudiée en utilisant des méthodes analytiques et numériques ainsi qu'à travers quelques mesures expéri-

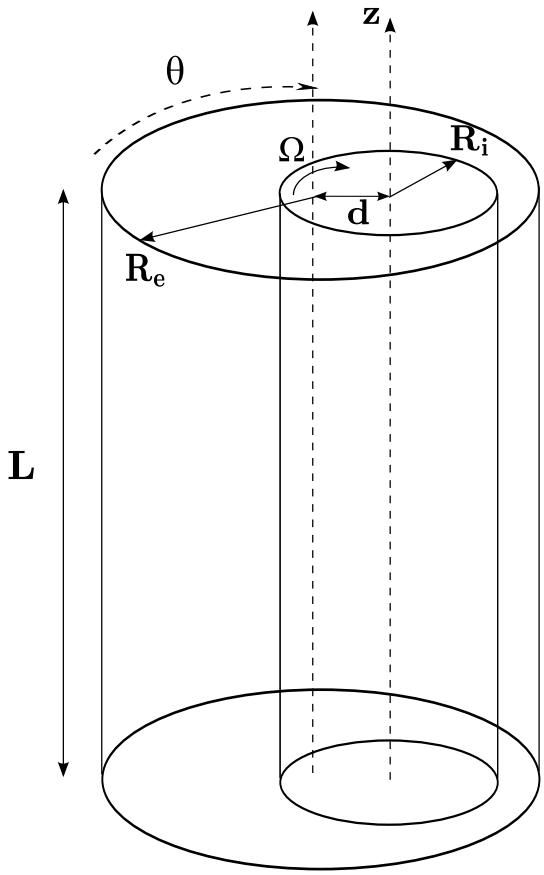


FIG. 5.3: *Géométrie des cylindres excentrés*

mentales. Wannier et Wilcock sont parmi ceux qui ont étudié théoriquement le comportement des fluides newtoniens entre deux cylindres excentrés. En 1950, Wannier [95] a déterminé les lignes de courant de l'écoulement lorsque seul le cylindre intérieur tourne. A cette occasion, il a montré l'existence d'une recirculation (écoulement de retour) dans la région où le « gap » est le plus important. Kamal [93] pense que les effets inertiels sont à l'origine de la perturbation de l'écoulement. Ce travail a mis en évidence le changement de position de la zone de séparation quand le nombre de Reynolds augmente, ainsi que le rôle important du paramètre de la courbure ($\epsilon = e/R_i$) dans la valeur critique de l'excentricité δ [96]. En 1972, les travaux théoriques de Diprima [97] sur l'analyse de stabilité locale du fluide newtonien dans cette géométrie dans les limites de lubrification (i.e. quand la courbure de la géométrie est inférieure au rapport des rayons R_i/R_e) montrent que l'excentricité déstabilise l'écoulement, et que la région la plus instable est celle où le gap est le plus grand. Ritchie [98] arrive à la même conclusion. Ballal et Rivlin [96] ont déterminé la solution exacte pour un fluide newtonien pour les faibles excentricités. Castle et Mobbs [99] ont étudié expérimentalement ces instabilités en mesurant le couple pour détecter leur apparition. Il ont constaté que lorsque $\delta \geq 0.3$, le nombre de Taylor croît rapidement.

Les études numériques sur l'écoulement de fluides newtoniens entre deux cylindres excentrés sont nombreuses. Nous pouvons citer, d'une part, les travaux de San Andree et Sreri [100] qui ont utilisé la méthode de Galerkin's. D'autres part, Roberts et *al* [101] ont utilisé la méthode spectrale pour étudier l'écoulement dans les géométries finies.

5.4.2 Fluides viscoélastiques

Un certain nombre de travaux théoriques ont été effectués dans les dernières années sur l'écoulement non-newtonien entre deux cylindres excentrés, notamment lorsque l'inertie du fluide est négligée. La plupart de ces travaux étudiaient le problème lorsque seul le cylindre intérieur tourne (le cylindre extérieur étant fixe). D'autres travaux se sont intéressés aux mélanges chaotiques comme ceux d'Ottino [94], de Kumar et Homsy [102], qui ont étudié l'advection chaotique lorsque les deux cylindres sont en contre-rotation, ou encore Français [103], qui a étudié les mélanges dans différents cas de rotations des cylindres pour un rapport de rayon égal à 4.

Les solutions exactes des équations du mouvement incluant l'équation constitutive de la viscoélasticité sont rares quand le champ de l'écoulement ne se compose pas de cisaillement homogène ou encore lorsqu'il présente de l'allongement (i. e. les contraintes normales ne sont pas homogènes). Dans ce cas, les non-linéarités dans l'équation constitutive exigent que l'écoulement soit déterminé par la solution numérique. Dans certains cas où la contrainte est une fonction explicite du gradient de vitesse, et pour les petites courbures ($\epsilon = e/R_i \leq 0.2$), on peut obtenir une solution analytique. Davies et Walter [104] ont effectué cette démarche pour l'écoulement entre deux cylindres excentrés de petites courbures, pour les petites excentricités et sans inertie. Ce travail a été effectué pour différents fluides (second ordre, troisième ordre, Oldroyd-B à 4 constantes). Ballal et Rivlin ont utilisé une analyse similaire que celle utilisée pour un fluide newtonien pour obtenir la solution exacte d'un fluide du second ordre sans inertie [105]. Dans le même cas de petites excentricités et petites courbures, Beris [106] a étudié le comportement d'un fluide de Maxwell entre deux cylindres excentrés. King [107] a montré que les contraintes à la parois deviennent très importantes lorsque $De \sim 4$.

Les simulations numériques concernant le comportement des fluides élastiques, dans cette géométrie ont été effectuées par de nombreux chercheurs [106, 108, 105, 109, 110], qui utilisent le plus souvent les éléments finis dans leurs calculs. Beaucoup moins de travaux expérimentaux existent à ce jour et à notre connaissance, concernant l'écoulement de fluides non newtoniens entre cylindres excentrés. D'après Shaqefeh, Lee et Fuller ont mesuré les contraintes dans un petit entrefer en utilisant des mesures de biréfringence d'une solution polymère (composée de polystyrène dans du tri-cresyl phosphate). Berker a utilisé la Vilocimétrie Laser Doppler pour mesurer les profils de

vitesses des lubrifiants commerciaux [5] [111]. Ces mesures ont été comparées aux prédictions de l'écoulement de Stokes. La conclusion de ces auteurs est que l'intensité de la vitesse de recirculation qui apparait pour le polymère est moins importante que celle du fluide newtonien (Fig.5.4). Ces mesures ont été effectuées pour $\epsilon = 0.2$, $De = 0.6$, $\Re_e = 77$. Dans ce cas les effets inertiels sont importants, cependant les auteurs ne les ont pas pris en compte dans leur analyse.

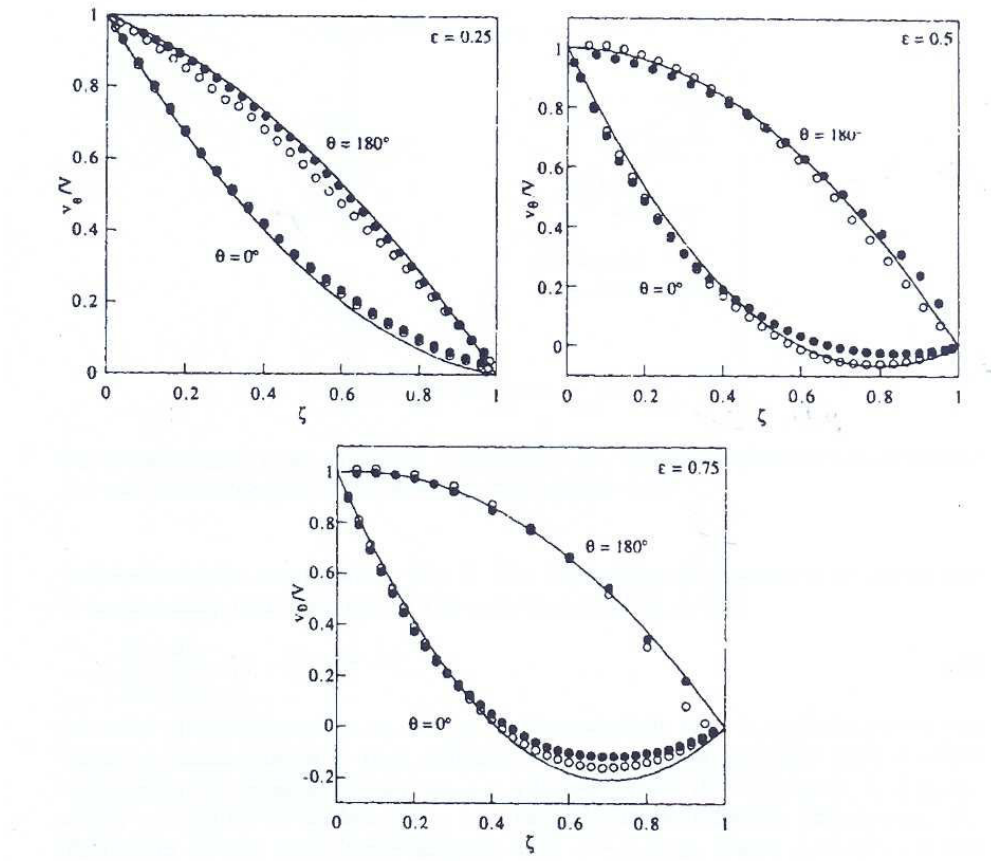


FIG. 5.4: *Figure extraite de [111] : profils de vitesses normalisées pour différentes excentricités dans la région où l'entrefer est le plus petit($\theta = 180^0$) et dans la région où l'entrefer est le plus grand ($\theta = 0^0$). Les profils en lignes donnent les prédictions théoriques. Le symbole ∘ représente les mesures expérimentales obtenues pour le fluide newtonien. Le symbole • représente les mesures expérimentales obtenues pour les solutions de polymère.*

Siginer et Bakhtiarov [112] ont utilisé une méthode de visualisation de l'écoulement par stroboscopie pour déterminer les profils de vitesses notamment dans la région où l'entrefer est grand, ils ont trouvé que l'intensité de la vitesse de recirculation du fluide viscoélastique (polyacrilamide) est plus importante que celle du fluide newtonien (Fig.5.5).

[5] Huile de moteur dans laquelle on ajoute de $0.5 - 2\%$ de polymère (styrene-butadiene-styrene)

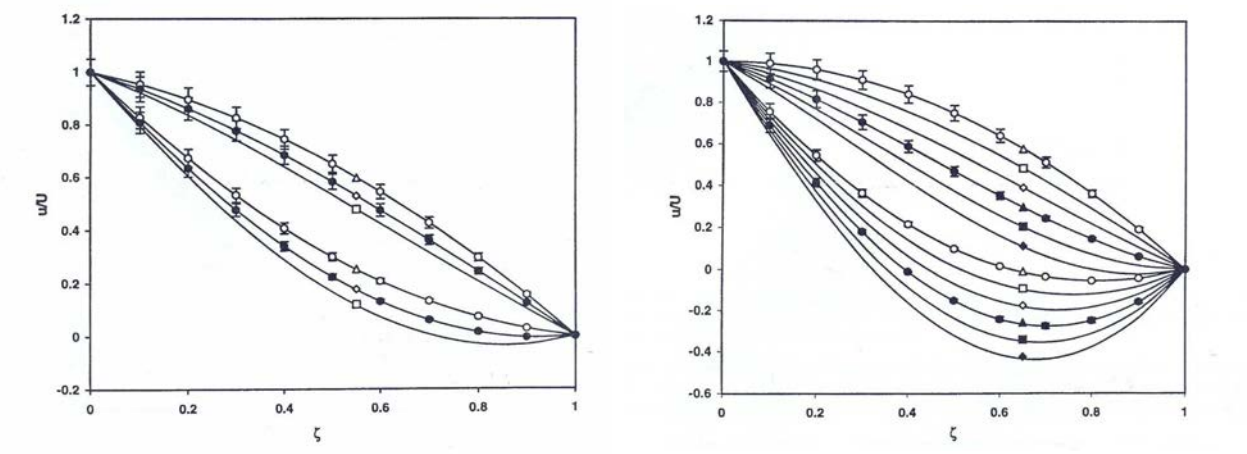


FIG. 5.5: *Figure extraite de [112] : profils de vitesse normalisée. A droite l'excentricité $\delta = 0.5$. A gauche l'excentricité $\delta = 0.25$. Au-dessus, les résultats pour le plus petit gap ($\theta = 0°$), et en dessous, ceux pour le plus grand gap ($\theta = 180°$). Les ligne représentent les résultats analytiques pour différents fluides non newtoniens. Le symbole ∘ représente les mesures expérimentales obtenues pour le fluide newtonien. Le symbole • représente les mesures expérimentales obtenues pour les solutions de polymère.*

Une étude expérimentale et théorique concluante sur l'instabilité élastique de l'écoulement entre deux cylindres excentrés a été effectuée par Dris et Shaqfeh [113, 114]. Ils ont étudié l'influence des caractéristiques de l'écoulement de base sur l'apparition des instabilités. Pour ce faire, des mesures expérimentales avec la Velocimétrie Laser Doppler, ont été réalisées et comparées avec leurs prédictions théoriques sur un modèle d'Oldroyd-B. Ce modèle décrit de manière satisfaisante le comportement viscoélastique des solutions du polymère utilisées (polyisobutyène à 1000 *ppm* dissous dans un fluide newtonien composé de polybutylène et du kérosène) dans la géométrie de cylindres excentrés ($\epsilon = 0.1333$). Ils ont montré que l'inhomogénéité des contraintes normales dans ces écoulements peut créer des écoulements secondaires (Fig.5.6). Il ont déduit que les deux facteurs essentiels qui contrôlent ces écoulements sont l'excentricité δ et les contraintes normales.

5.5 Situation présente du problème (notre étude)

Dans notre travail, nous nous sommes intéressés aux écoulements à faibles nombres de Taylor de différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant (sans contrainte seuil), fortement rhéofluidifiant (présentant une contrainte seuil). Nous avons utilisé la technique de la PIV pour mesurer le champs de vitesse dans tout l'entrefer, ce qui nous a permis d'avoir des informations locales de l'écoulement ainsi nous avons pu mener des investigations sur l'influence de l'excentricité, et du

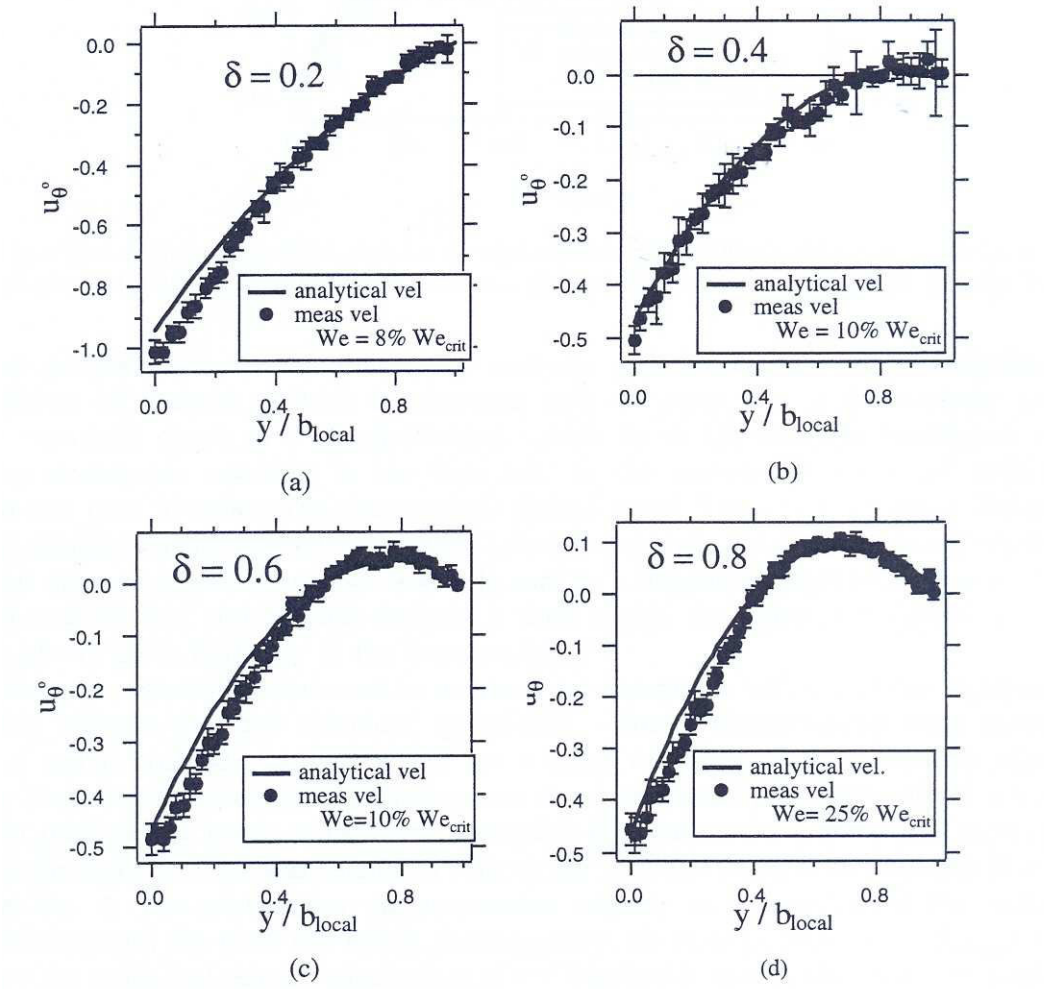


FIG. 5.6: *Figure extraite de [114] : profils de vitesses pour différentes excentricités δ dans la région où l'entrefer est le plus grand, pour différents nombres de Weissenberg. Les profils en lignes donnent les prédictions théoriques pour le modèle d'Oldroyd-B. Le symbole • représente les mesures expérimentales obtenues pour les solutions de polymère avec la LDV.*

caractère rhéofluidifiant sur l'écoulement.

Chapitre 6

Dispositif expérimental et méthodes

Le dispositif expérimental utilisé dans notre étude a été réalisé durant ma thèse. Il permet un écoulement académique entre deux cylindres d'axes parallèles (centrés et excentrés). Notre étude s'intéresse à déterminer le champ de vitesses bidimensionnel dans un plan perpendiculaire à l'axe des cylindres, pour des écoulements stationnaires et instationnaires, par la mise en oeuvre de la technique de *Vélocimétrie par Images de Particule* (Particle Image Velocimetry, d'où PIV).

Dans ce chapitre, nous décrivons le dispositif expérimental ainsi que la technique de mesure utilisée (PIV 2D) pour mesurer le champ de vitesse instantané dans l'entrefer.

Sommaire

6.1 Technique de mesure 127

6.2 Description du dispositif expérimental 131

6.3 Procédure de mesure 136

6.4 Validation du dispositif expérimental 136

6.5 Conclusion 141

6.1 Technique de mesure

Parmi les techniques de mesure récentes couramment utilisées pour mesurer la vitesse, nous citons :

- la vélocimétrie laser doppler (LDV), qui permet de mesurer la vitesse en un seul point au cours du temps [114].
- la mesure par ultra-sons qui permet de mesurer un profil de vitesse [115, 116].
- la vélocimétrie par images de résonance magnétique (IRM), qui permet de mesurer un champ de vitesse bidimensionnel [117, 118].
- la Vélocimétrie par images de particules 2D et 3D (PIV), qui permettent de mesurer respectivement un champ de vitesse bidimensionnel et tridimensionnel.

L'amélioration de la PIV au cours de ces dernières années, confère à cette technique un atout pour accéder de manière précise au champ de vitesses instantané. Nous utilisons dans notre travail la PIV 2D [119, 120].

6.1.1 Principe de base de la PIV (2D)

La vélocimétrie par images de particules (ou Particule Image Velocimetry d'où PIV) est une technique permettant la mesure de la vitesse de particules solides introduites dans le fluide. Cette technique expérimentale permet l'obtention simultanée de deux composantes de vitesse dans le plan illuminé par une nappe laser très fine. La lumière diffusée par ces particules est captée par une caméra CCD placée face à la nappe laser (Fig.6.1). Le principe est basé sur la capture de deux images successives, séparées de δt, correspondantes aux deux pulses du laser, et qui sont transférées à un corrélateur câblé. Les images sont divisées en sous-zones appelées fenêtres d'interrogation, afin de déterminer pour chacune d'elles le vecteur déplacement local par l'intermédiaire de méthodes statistiques utilisant la transformée de Fourrier rapide FFT [121]. L'hypothèse est faite que toutes les particules contenues dans une fenêtre se déplacent uniformément. Connaissant le temps qui sépare la capture des deux images, et connaissant la calibration spatiale des images enregistrées, le champ de vecteurs déplacement est converti en un champ de vecteurs vitesse.

Les particules d'ensemencement : elles servent de traceur et permettent la mesure du champ de vitesses. La diffusion de la lumière par les particules influence directement la qualité de mesure puisque le calcul des déplacements se fait à partir du centre de gravité de l'image de la particule. Les particules d'ensemencement utilisées sont des microsphères de verre creuses argentées de 15 μm de diamètre moyen [1], leur densité est proche de la densité de l'eau. Nous avons veillé à répartir, de

[1] Ce sont des particules généralement utilisées en mécanique des fluides, notamment quand il s'agit de la méthode de la PIV

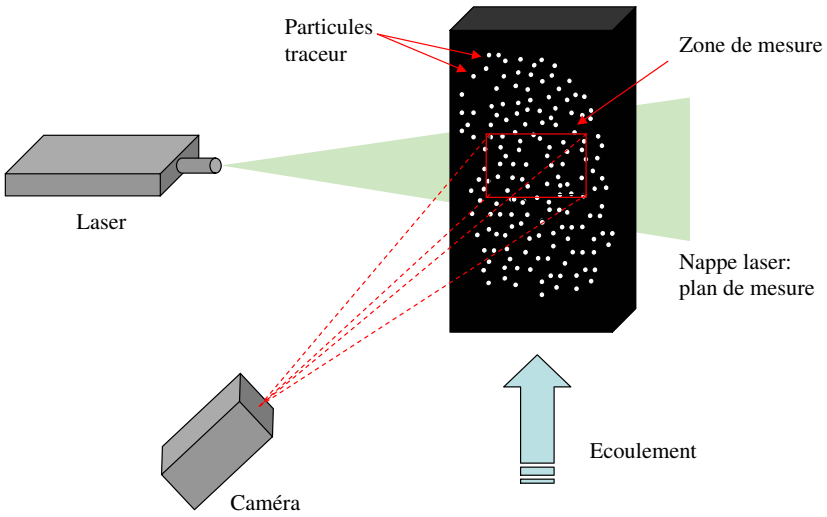


FIG. 6.1: *Schéma illustrant le principe de la technique de vélocimétrie par images de particules (PIV)*

façon homogène, les particules dans le fluide. En pratique, la concentration optimum de mesure est de 10^{10} à 10^{11} particules par m^3 [121], elle permet d'obtenir des images de particules individuelles, à condition de n'être pas trop faible. En effet, pour une trop faible concentration, les particules ne seraient pas distribuées uniformément et la vitesse ne pourrait pas être obtenue en tout point du champ étudié.

La nappe laser : Afin d'avoir l'image des particules « figées » , la source lumineuse nécessaire doit être de forte puissance et uniforme. Nous avons utilisé un laser pulsé **Neodym-Yag (Nd-Yag)** ; il est constitué de deux cavités couplées produisant une énergie de 100 millijoules à chaque émission, d'une durée de quelques nano-secondes, avec des écarts temporels entre les deux pulses de la micro-seconde à quelques millisecondes, permettant ainsi d'effectuer des mesures de faibles et importantes vitesses. Le laser Nd-Yag utilisé a une longueur d'onde de 532 nm et une fréquence maximale de répétition des deux pulses de 10 Hz.

Caméra CCD : La capture des images se fait au moyen d'une caméra CCD (Charge Coupled Device) *Kodak Megas plus* model ES 1.0. Elle contient 1016×1008 pixels (environ 1 million de pixels), la distance entre deux pixels (pitch pixel) étant de $9 \times 9\mu m$. La fréquence maximale d'échantillonnage est de $15Hz$. Les images sont transférées au corrélateur en temps réel ou à l'ordinateur.

6.1.2 La corrélation croisée appliquée à la FFT

Chacune des deux images enregistrées est divisée en fenêtres d'interrogation et à chaqu'une d'elles est attribuée une fonction $f(k,l)$ qui représente l'intensité lumineuse où k et l sont respectivement les coordonnées des pixels suivant les axes X et Y (Fig.6.2).

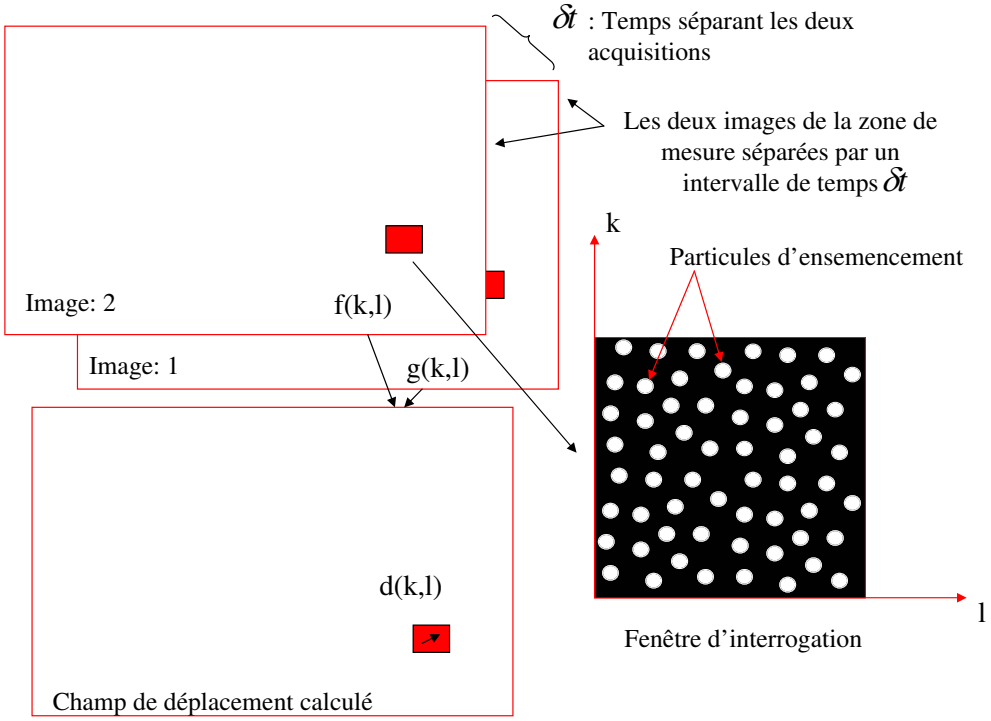


FIG. 6.2: *Calcul du champ de vitesses par la corrélation croisée appliquée à la FFT*

Soient $f(k,l)$ et $g(k,l)$ les deux fonctions associées à la même fenêtre d'interrogation $(N \times N)$ des deux images successives (Fig.6.2). Le calcul de la fonction de décalage $s(k,l)$ à partir des valeurs connues de f et g se fait par une technique statistique d'intercorrélation spatiale. La fonction de corrélation croisée discrète est obtenue par la relation :

$$C_{fg} = \frac{1}{(2N)^2} \sum_{k=N-1}^{k=0} \sum_{l=N-1}^{l=0} f(k,l)g(k-x,l-y) \tag{6.1}$$

où x et y sont les déplacement en pixels.

Le calcul de cette fonction est réalisé par transformée de fourrier rapide (FFT). La valeur maximale de l'intercorrélation correspond à l'endroit où le décalage spatial d'un grand nombre de particules est cohérent, c'est-à-dire le déplacement le plus probable, il s'agit de la *véritable corrélation*. Les autres valeurs (très petites devant le maximum) correspondent aux endroits où le décalage n'est pas cohérent, dans ce cas il s'agit de la corrélation *aléatoire*.

La position du pic par rapport au centre de la fenêtre d'interrogation détermine un vecteur déplacement moyen $\vec{d}(x, y)$ des particules qui, divisé par le temps écoulé δt entre les deux images (deux pulses), permet d'obtenir le module et la direction de la vitesse correspondante à la fenêtre en question.

6.1.3 Paramètres affectant le rapport : Signal/Bruit

La transformée de Fourrier rapide (FFT) est une somme définie sur un domaine s'étendant de $-\infty$ à $+\infty$. Cependant, chacune des sommes que nous avons à traiter ne peut être réalisée que sur un domaine fini [121], ce qui introduit des erreurs systématiques sur les résultats issus de la corrélation croisée, comme les erreurs de *biais* et d'*Aliasing* :

Erreur de biais : elle est due à la troncature induite par les bords de la fenêtre.

Aliasing : Le critère d'échantillonnage de Nyquist associé à la FFT limite le déplacement maximal à une demi-longueur de fenêtre d'interrogation et ceci dans toutes les directions. Un déplacement maximal de $N/4$ est recommandé afin d'assurer un rapport *signal/bruit* d'une valeur correcte. Pour optimiser les déplacements, il faut varier la taille N de la fenêtre ou l'écart de temps δt entre deux enregistrements.

6.1.4 Résolution du champ de vitesses

La résolution spatiale du champ de vitesses est déterminée par la taille de la fenêtre d'interrogation dans le plan image. Celle-ci est donnée par :

- le rapport $S_f = \frac{Objet}{Image}$ nommé « scale factor », il est déterminé par la focale,
- la distance d_{pith} entre deux pixels sur le support CCD de la caméra,
- la taille en pixels de la fenêtre d'interrogation,

Le facteur S_f est déterminé à partir du dispositif expérimental, et la taille du pixel est une caractéristique de la caméra ($9 \times 9\mu m$). La propriété variable est la taille des fenêtres d'analyse qui est de : 16×16, 32×32, 64×64 ou 128×128 pixels. Cette dimension doit être choisie en fonction du déplacement maximum des images traceur. Si ce déplacement est trop important par rapport à la fenêtre, les images des particules obtenues lors du deuxième enregistrement auront tendance à se situer au delà des limites de la fenêtre d'analyse. La corrélation deviendra ainsi de plus en plus mauvaise, le pic de corrélation ayant une amplitude de plus en plus faible, il deviendra ainsi difficile de déterminer le lieu du pic de la véritable corrélation (amplitude maximale). Pour éviter ce paramètre qui diminue le rapport Signal/Bruit, on utilisera des fenêtres 3 ou 4 fois plus grandes que le déplacement des particules. A cette condition, la corrélation sera de bonne qualité.

Un autre paramètre à déterminer est le pas des fenêtres. En effet, celles-ci ne sont pas simplement juxtaposées, mais peuvent présenter un certain recouvrement. Lorsqu'on augmente le recouvrement (diminue le pas), le nombre de vecteurs $\vec{v}$ augmente, ce qui peut améliorer le calcul notamment lorsque l'écoulement présente un fort gradient de vitesse, comme dans le cas d'un écoulement de cisaillement où le déplacement des particules dépend de la position.

6.2 Description du dispositif expérimental

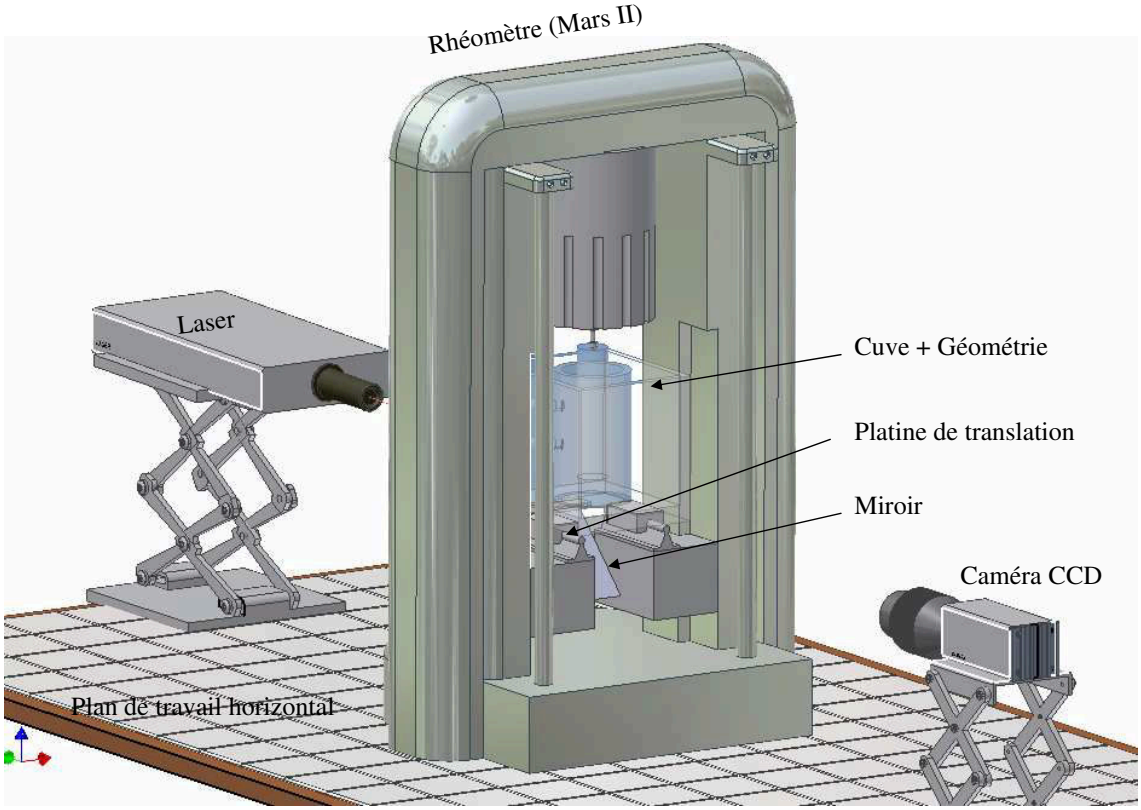


FIG. 6.3: *Vue général du dispositif expérimental (A. Gérard et C. Kahn)*

Le dispositif expérimental (Fig.6.3) mis en place se compose d'un cylindre intérieur en plexiglas ($R_i = 20mm$) dont la rotation est contrôlée au moyen d'un rhéomètre MARS II (ThermoFisher Scientific) et un cylindre extérieur également en plexiglas fixe ($R_e = 40mm$). Ce dernier peut se déplacer par rapport au cylindre intérieur à l'aide d'une platine de translation pour réaliser différentes configurations de Couette cylindrique excentré ($d = 0$ à $15mm$). La hauteur L du système est de $200mm$, représentant une bonne approximation d'un écoulement bidimensionnel. Le laser est placé face à la géométrie, il produit une nappe laser horizontale, éclairant une région d'écoulement (mi-hauteur). Un miroir réfléchissant est fixé (sur un axe formant 45^0 avec l'axe du

rhéomètre) en dessous de la base du cylindre extérieur (Fig.6.4) ; il renvoie les images vers une caméra CCD. La zone de mesure en question est l'espace plan entre les deux cylindres à mi-hauteur afin d'éviter les effets de bords (Fig.6.4).

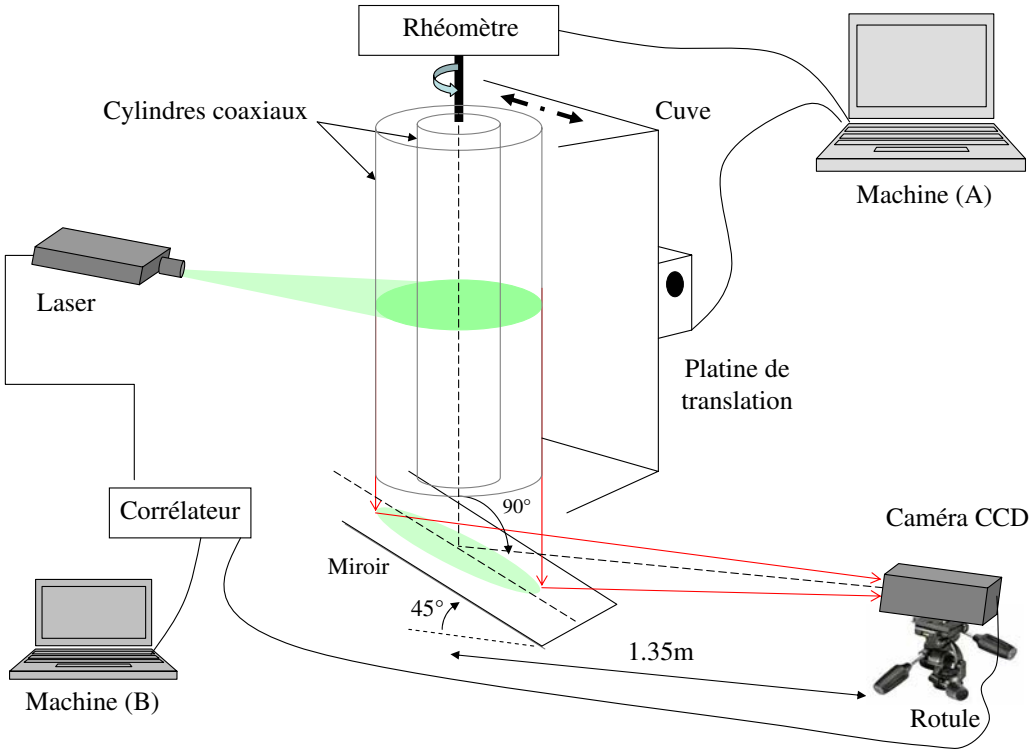


FIG. 6.4: *Dispositif expérimental*

6.2.1 Géométrie, Rhéomètre et Platine de translation

La géométrie de mesure est réalisée au sein du LEMTA, elle est introduite dans le rhéomètre Mars II. En effet, ce dernier permet l'implantation de grandes géométries, Fig.6.5, dans le but de réaliser des écoulements dans de grands entrefers. Le pilotage du rhéomètre se fait avec le logiciel Rheowin (Machine A), Quant à la platine de translation, elle est pilotée par un programme conçu au LEMTA (Fig.6.4).

Le système de fixation du cylindre intérieur sur le rhéomètre est un pas de vis conique pour assurer un bon alignement des axes. Toutefois, au niveau du plan de mesure, et pour de grandes vitesses de rotation ($10 rad/s$), nous mesurons un déplacement maximal perpendiculaire à l'axe vertical de $0.5 mm$, ce qui donne une erreur maximale de 2.5%.

Le cylindre extérieur est fixé dans une cuve cubique en plexiglas remplie d'eau dans le but de minimiser les effets de la courbure de la géométrie. Cette cuve sert également, par le biais

d'une recirculation de l'eau, à contrôler la température et minimiser l'évaporation du fluide dans la géométrie de Couette.

La cuve peut glisser latéralement sur deux rails (Fig.6.5), au moyen d'un roulement à billes, grâce à une platine de déplacement. Nous pouvons ainsi réaliser différents déplacements du cylindre extérieur, pour excentrer la géométrie (Fig.6.6, Fig.6.7).

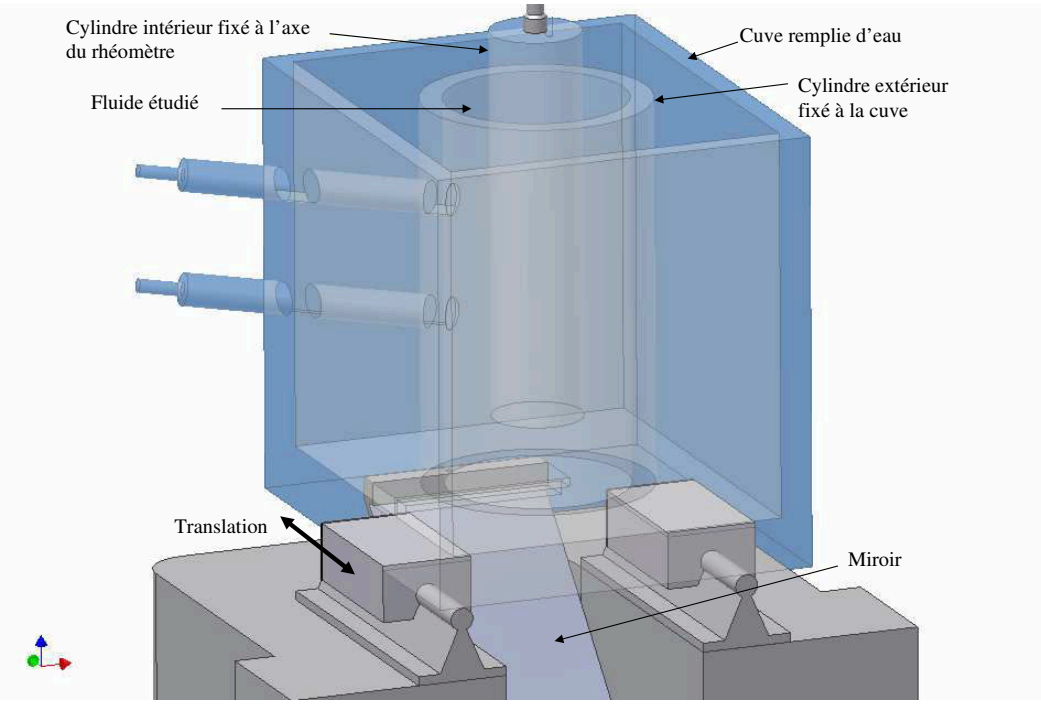


FIG. 6.5: *Géométrie de mesure*

On considère que les cylindres sont infinis ($L \gg r$) et on définit les paramètres caractéristiques de la géométrie, à savoir :

– l'entrefer moyen e :

$$e = R_e - R_i = 20mm \tag{6.2}$$

– la courbure ϵ :

$$\epsilon = e/R_i = (R_e - R_i)/R_i = 1 \tag{6.3}$$

– l'excentricité δ :

$$\delta = d/R_i \tag{6.4}$$

d est le déplacement du cylindre extérieur par rapport à la position de Couette centré (distance entre les axes z' et z sur les figures Fig.6.6 et Fig.6.7).

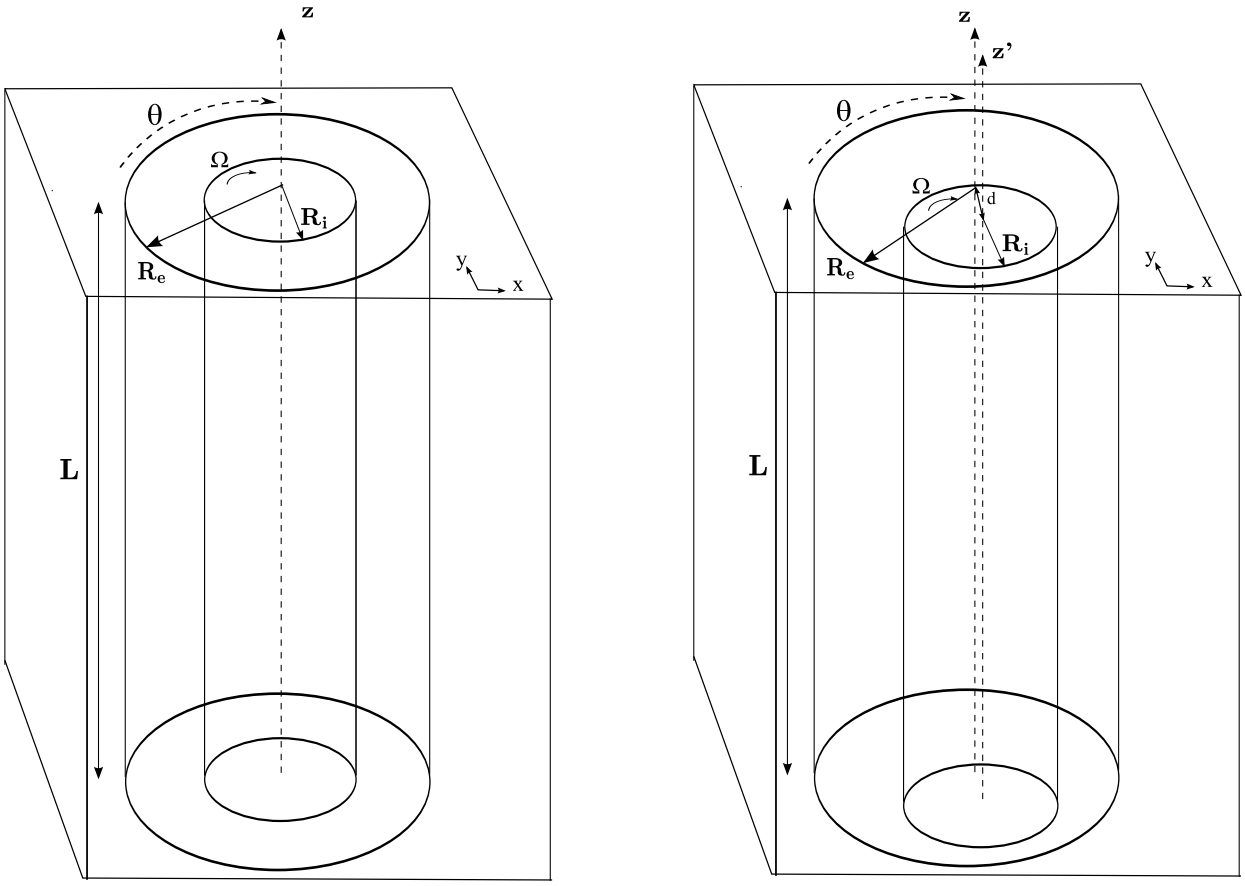


FIG. 6.6: *Différentes configurations de géométries. A gauche : centrée, à droite : excentrée (Vue latérale).*

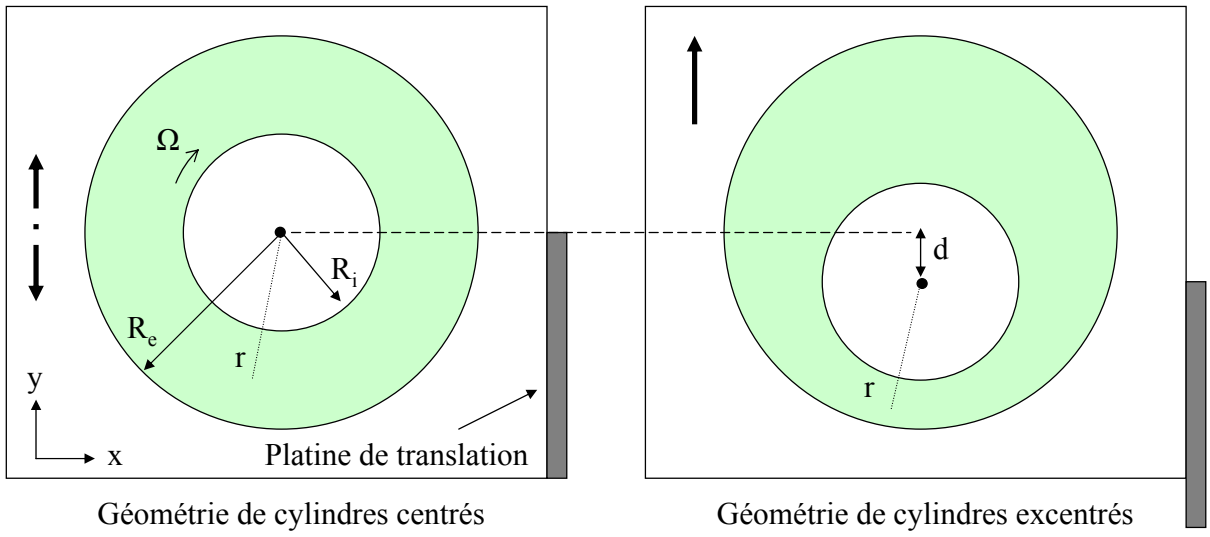


FIG. 6.7: *Différentes configurations de géométries : centrée et excentrée (Vue de haut)*

6.2.2 Positionnement de la caméra par rapport à la nappe laser

La nappe laser étant perpendiculaire à la génératrice de la géométrie de mesure (à mi-hauteur), la caméra doit être positionnée face à la nappe de façon à éviter les effets de parallaxe et les effets d'angle solide.

Effets de parallaxe : l'effet de parallaxe est introduit par l'angle entre l'axe de la caméra et le plan de mesure. Cet effet peut être éliminé en alignant parfaitement la caméra avec la normale au plan, c'est pour cela que nous avons fixé la caméra sur une rotule sphérique [2] permettant le réglage de la caméra dans tous les plan verticaux.

Effets d'angle solide : même si la caméra est positionnée sur l'axe normal au plan laser, elle peut, à cause de son angle solide, observer une composante en dehors du plan de mesure. Cet effet a été réduit en utilisant une focale de $135mm$ (Fig.6.8).

Pour bien régler la position de la caméra et effectuer la calibration du dispositif expérimental, nous nous sommes servi d'un certain nombre de repères comme l'image du bord haut ainsi que la coupe horizontale du cylindre intérieur, (Fig.6.8). Ces deux derniers doivent être centrés. La mise au point de l'image se fait de manière à occuper le maximum d'espace sur le plan CCD de la caméra afin d'augmenter la résolution de l'image.

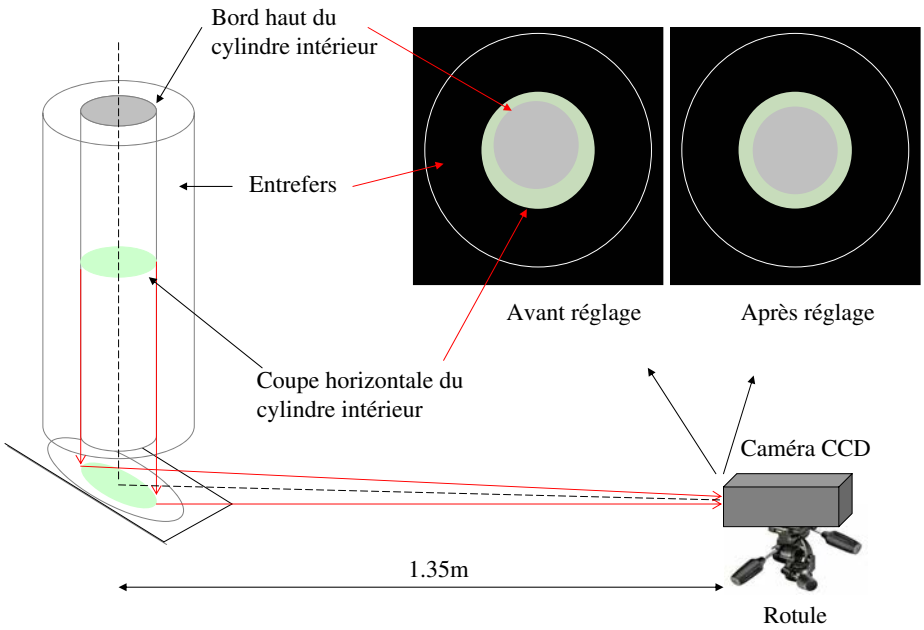


FIG. 6.8: *Mise au point du dispositif expérimental*

[2] Organe de liaison d'appuis qui permet la libre rotation de la pièce appuyée dans tous les plans verticaux

6.3 Procédure de mesure

La mise en place du fluide dans la géométrie par transvasement engendre parfois l'apparition de bulles d'air dans la solution, ce qui peut être une source d'erreurs pour la mesure. En effet la présence de ces dernières peut modifier la viscosité et la densité du fluide. En outre, les bulles visibles réfléchissent la lumière, ce qui rend la mesure inexploitable, voire impossible. Pour toutes ces raisons, nous veillons à ce que le fluide ne comporte pas de bulles avant chaque mesure.

Une fois le fluide mis en place, nous mettons en rotation le cylindre intérieur grâce au rhéomètre *MARS II* (Fig.6.4). L'écoulement étant stationnaire, nous vérifions d'abord l'homogénéité de la température du fluide dans tous l'entrefer pour éviter les effets de stratification (21^0C). Ensuite, nous effectuons la mesure du champ de vitesses par la PIV, dans l'espace (x, y) et durant un temps t, afin d'obtenir plusieurs champs de vitesses stationnaires. La moyenne statistique de ces derniers constitue le résultat de la mesure du champ de vitesses dans l'espace annulaire.

Avant chaque validation de mesure, nous effectuons plusieurs essais préliminaires du champ de vitesses afin de choisir la taille de la fenêtre d'interrogation N_{int}. En effet, il est intéressant d'avoir un nombre maximal de points de mesure dans l'entrefer. Cependant, il faut que le déplacement des particules soit conséquent pour réduire l'erreur de mesure. Dans notre cas, des fenêtres de 32×32 pixels constituent un bon compromis pour avoir la meilleure mesure possible. Nous montrerons par la suite que dans le cas des fluides très rhéofluidifiants qui font apparaître de forts gradients de vitesses, la taille des fenêtres d'interrogation adéquate est de 16×16.

La mesure du profil de vitesses le long d'un rayon r est obtenue par un programme Matlab qui transforme la matrice (x, y, u, v) obtenue en coordonnées cartésiennes en une matrice $(x_0, y_0, v_r, v_\theta)$ en coordonnées polaires dont l'origine est le centre des cylindres :

$$\begin{aligned} x_0 &= x - x_{centre} \\ y_0 &= y - y_{centre} \\ v_r &= u.cos(\theta) + v.sin(\theta) \\ v_\theta &= -u.sin(\theta) + v.cos(\theta) \end{aligned} \tag{6.5}$$

où x_{centre} et y_{centre} correspondent aux coordonnées de la position du centre des deux cylindre sur l'image obtenue par la caméra CCD (Fig.6.9).

6.4 Validation du dispositif expérimental

La mesure du champ de vitesses stationnaire d'un fluide newtonien dans la géométrie centrée de Couette est nécessaire pour valider nos investigations. En effet, nous pouvons comparer les résultats

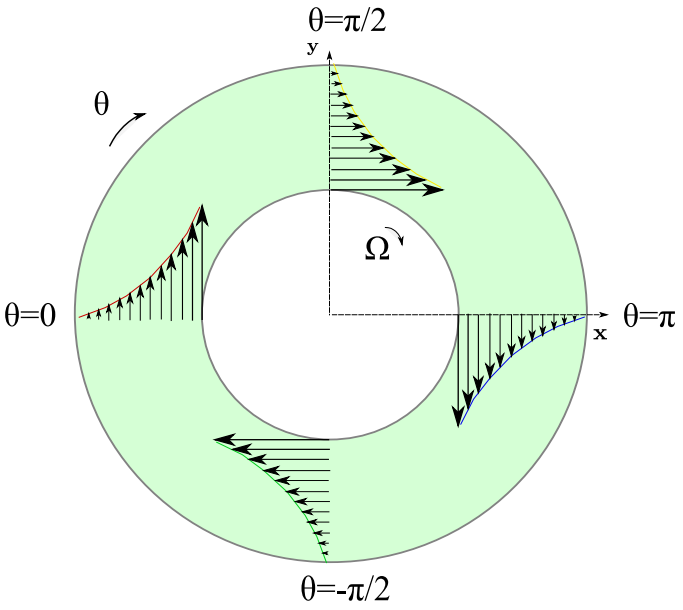


FIG. 6.9: *Écoulement laminaire dans une géométrie de cylindres coaxiaux (Couette)*

obtenus par les mesures sur un fluide newtonien et la solution exacte du champ de vitesses dans l'entrefer de cette géométrie en intégrant les équations de Stokes.

6.4.1 Théorie et hypothèses

Nous étudions l'écoulement permanent d'un fluide incompressible, de viscosité η, compris entre deux cylindre coaxiaux de rayons R_i et R_e. Le cylindre intérieur (R_i) tourne avec une vitesse de rotation Ω, et le cylindre extérieur (R_e) est fixe. On suppose qu'aucun gradient de pression n'est appliqué extérieurement. Dans un système de coordonnées cylindriques (r, θ, z) où l'axe Oz est confondu avec celui des cylindres, nous cherchons à déterminer les composantes de la vitesse (v_r, v_θ, v_z). Cet écoulement correspond à des champs de pression et de vitesse indépendants de z et de θ. Il s'agit donc d'un écoulement circulaire à faible nombre de Taylor ($Ta \ll 40$) donné par l'équation Eq.6.6. La connaissance de la viscosité du matériau permet de déduire la limite supérieure Ω_c de la gamme de vitesses Ω dans le régime laminaire. Dans ce cas, compte tenu de la symétrie du problème par rapport aux plans perpendiculaires à Oz et de l'absence de gradient de pression axial, $v_z = 0$. Par ailleurs, compte tenue de la symétrie de la géométrie, v_θ est indépendante de θ.

$$Ta = \frac{r\Omega e}{\nu}\sqrt{\frac{e}{r}} \tag{6.6}$$

L'équation de conservation de la masse pour un fluide incompressible ($divv = 0$) donne :

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(rv_r) = 0 \tag{6.7}$$

La résolution de cette équation avec les conditions aux limites $v_r(r = R_i) = v_r(r = R_e) = 0$ permet de montrer que v_r est nul dans tout le fluide :

$$v_r = 0 \tag{6.8}$$

Les équations de Navier-Stokes écrites en coordonnées cylindriques donnent :

$$\frac{v_\theta^2}{r} = \frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial r} \tag{6.9}$$

$$\nu\left(\frac{\partial^2 v_\theta}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial v_\theta}{\partial r} - \frac{v_\theta}{r^2}\right) = 0 \tag{6.10}$$

Dans l'équation Eq.6.9, le terme v_θ^2/r correspond à la force centrifuge due à la courbure des trajectoires des particules fluides. La résolution de l'équation Eq.6.10 avec pour conditions aux limites $v_\theta(r = R_i) = \Omega R_i$ et $v_\theta(r = R_e) = 0$, donne :

$$v_\theta = \frac{\Omega R_i^2}{Re^2 - Ri^2}\left(\frac{R_e^2}{r} - r\right) \tag{6.11}$$

Le fluide newtonien utilisé est l'Emkarox dont le comportement rhéologique est vérifié par des mesures sur le rhéomètre *AR2000* en utilisant une géométrie cône-plan. La viscosité dynamique du matériau newtonien est de 1000 fois celle de l'eau, de façon à pouvoir mesurer des champs laminaires jusqu'à des vitesses de rotation Ω importantes ($10 rad/s$), tout en restant dans le régime laminaire.

6.4.2 Comparaison pour différents rayons R de l'entrefer

La comparaison avec différents profils correspondant à plusieurs rayons R (différents axes) permet de confirmer que toute les vitesses mesurées sont correctes, dans le bon plan horizontal, et que le centrage des deux cylindres est correct.

La figure Fig.6.10 représente les quatre profils de vitesse tangentielle v_θ : pour $\theta = 0, \theta = 90, \theta = 180$ et $\theta = -90$, comparés avec la solution exacte pour $\Omega = 10 rad/s$. Cette figure montre que tous les profils sont superposés et confondus avec la solution analytique. Par ailleurs, la figure Fig.6.11 qui représente la composante radiale v_r de la vitesse pour les quatre profils, montre que cette composante est nulle dans tout l'entrefer, ce qui confirme que nous mesurons bien un champ de vitesses d'un écoulement orthoradial.

6.4.3 Comparaison pour différentes vitesses Ω du cylindre intérieur

Pour valider totalement cette méthode de mesure, nous avons répété les mesures pour plusieurs vitesses Ω (1, 3, 5, $10 rad/s$). La comparaison avec les profils de vitesses analytiques est représentée sur la figure Fig.6.12 où nous constatons une très bonne concordance entre mesure et théorie.

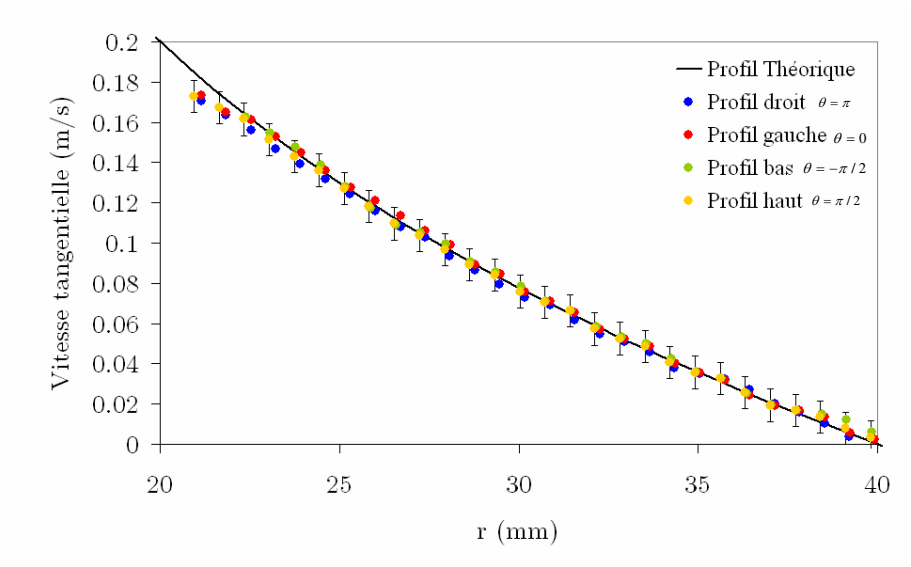


FIG. 6.10: *Profils de vitesses tangentielles v_θ d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien pour différents rayons r de l'entrefer (droit : $\theta = 2\pi$, gauche : $\theta = 0$, haut : $\theta = \pi$, bas : $\theta = -\pi$), ainsi que le profil de vitesse exacte calculé analytiquement pour une vitesse de rotation $\Omega = 10 rad/s$.*

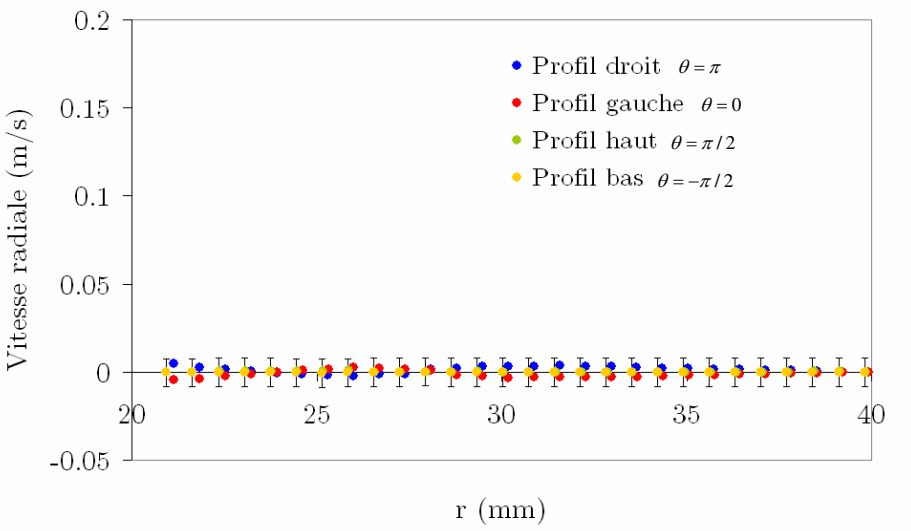


FIG. 6.11: *Profils de vitesses radiales v_r d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien pour différents rayons r de l'entrefer (droit : $\theta = 2\pi$, gauche : $\theta = 0$, haut : $\theta = \pi$, bas : $\theta = -\pi$), pour une vitesse de rotation $\Omega = 10 rad/s$.*

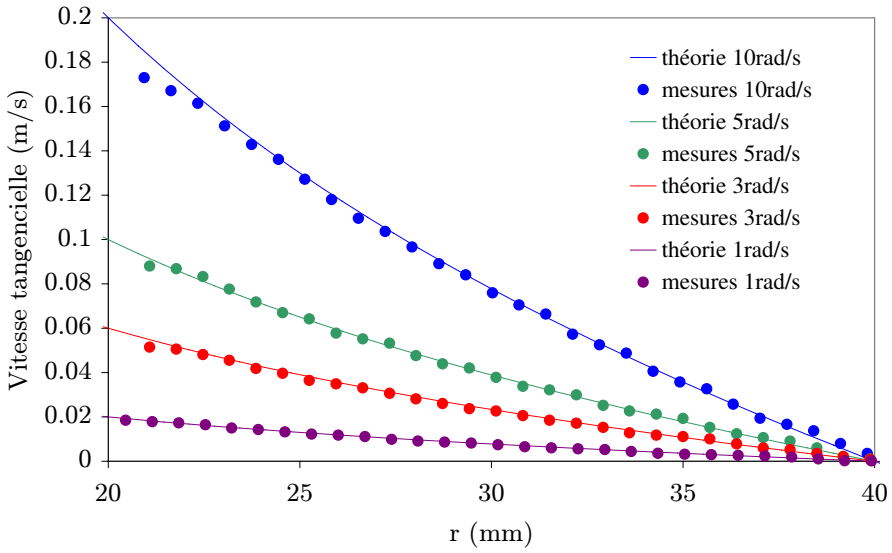


FIG. 6.12: *Profils de vitesses tangentielles v_θ d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien pour différentes vitesses de rotation $\Omega = 1, 3, 5, 10 rad/s$ ainsi que les profils de vitesse exactes calculés analytiquement pour chaque vitesse de rotation.*

Les mesures ont montré que l'erreur maximale, sur une vitesse importante de l'ordre de $0.17 m/s$ près du cylindre intérieur, est de 5% (Fig.6.12). Nous avons constaté que cette erreur est d'autant plus petite que la vitesse de rotation est petite (Expemple : l'erreur est de moins de 1% pour une vitesse de rotation de $1 rad/s$). En revanche, cette erreur peut être plus imortante quand il s'agit d'un fluide fortement rhéofluidifiant, à cause de l'effet important des gradients de vitesse dans l'entrefer.

Dans ce cas là, nous avons réalisé trois mesures pour obtenir un seul champs de vitesses : une première mesure relative aux faibles gradients de vitesses (très faibles vitesses) pour $r \geq r^{**}$, une deuxième relative aux gradients moyens (petites vitesses) pour $r^* \leq r \leq r^{**}$, et une troisième relative au très forts gradients de vitesses (grandes vitesses) $r \leq r^*$, r^* et r^{**} étant deux positions fixes de r ($r^* \prec r^{**}$)

Par ailleurs, le calcul par intercorrélation des vitesses locales dans les fenêtres situées près du cylindre intérieur est affecté par les condition aux limites à $r = R_i$ et le manque de particules. Par conséquent, les deux points de mesure les plus proches de la parois pour $r = R_i$ et $r = R_i + \Delta r$ ne sont pas représentés ($\Delta r = 0.75 mm$).

Il est à noter que toutes nos mesures sont réalisées pour des vitesses (de rotation du cylindre intérieur) inférieures ou égales à $10 rad/s$.

6.4.4 Lignes de courant

L'écoulement étant permanent, les trajectoires et les lignes de courant sont confondues, et sont données par l'équation Eq.6.11 et l'intégration de l'équation $dx/u = dy/v$. Les courbes théoriques ($r^2 = constante$) sont des cercles concentriques de rayon r ; elles sont comparées à celles obtenues à partir de la matrice (x, y, u, v) du champ de vitesse obtenu par la mesure (PIV). La figure Fig.6.13 montre, en effet, que les lignes de courant sont des cercles concentriques, sauf dans les zones perturbées. Il s'agit de zones ombrées sur l'image résultant de la vergence de la nappe laser dans le cylindre intérieur. Pratiquement, il ne nous a pas été possible de parer à cette hétérogénéité de lumière. Dans ces zones, l'intensité réfléchie par les particules est réduite et le rapport signal sur bruit augmente, ce qui affecte le calcul de la vitesse.

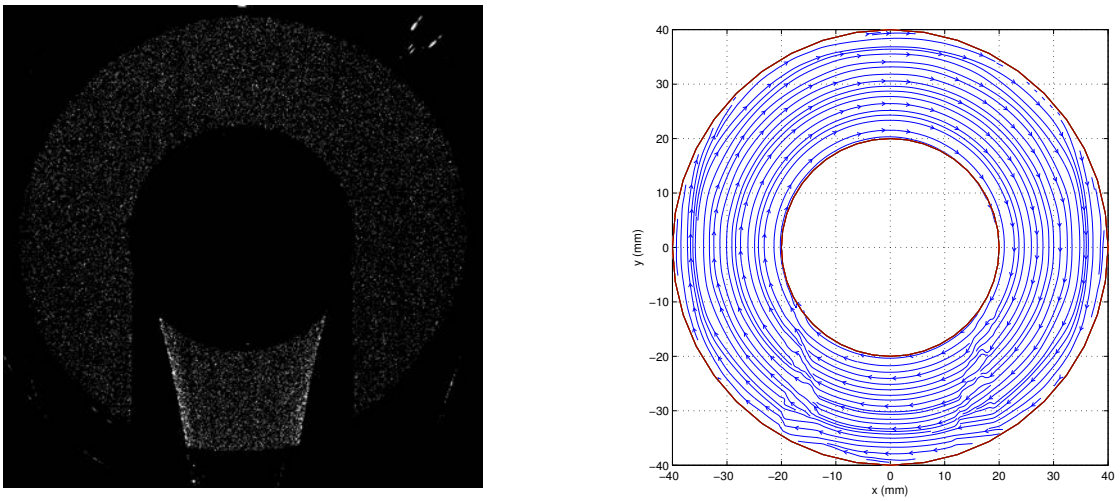


FIG. 6.13: *Lignes de courant calculées du champ de vitesse par PIV pour l'Emkarox® (fluide newtonien), A gauche : l'image de la mesure, A droite : les lignes de courant correspondantes.*

En conclusion, malgré les perturbations dues à la mesure, le champ de vitesse reste globalement très correct, et les lignes de courant parfaitement circulaires, et ce dans quasiment tout l'entrefer.

6.5 Conclusion

Après une mise en place du dispositif expérimental, nous avons mis en oeuvre la technique PIV suite à une multitude de réglages (caméra, plan laser). La validation de cette méthode a été réalisée pour un fluide newtonien. En effet, les profils de vitesse obtenus expérimentalement pour différentes vitesses de rotation du cylindre intérieur sont vérifiés analytiquement suivant les quatre

rayons vecteur cardinaux, l'erreur maximale mesurée est de 2.5%. Le dispositif expérimental ainsi validé nous permet de mener des investigations de fluide non newtoniens dans les géométries de cylindres centrés et excentrés.

Chapitre 7

Ecoulements dans des géométries à cylindres centrés et excentrés

Dans ce chapitre nous étudions les écoulements stationnaires dans des géométries à cylindres centrés et excentrés, à faibles nombres de Reynolds, pour différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant et un fluide fortement rhéofluidifiant. Nous étudions, dans un premier temps, l'écoulement viscosimétrique établi entre deux cylindre coaxiaux ; en présentant le comportement rhéologique ainsi que les champs de vitesse locaux déterminés pour chaque fluide. Puis, nous nous intéressons à la loi de comportement locale déterminée à partir des mesures de champ de vitesses dans l'entrefer. Dans un second temps, nous nous intéresserons aux écoulements établis entre deux cylindres excentrés. Nous donnons les différents résultats des champs de vitesses dans l'entrefer ainsi que ceux obtenus par des simulations sur Fluent.

Sommaire

7.1 Rhéologie des fluides utilisés 145

7.2 Ecoulements bidimensionnels dans une géométrie à cylindres coaxiaux 147

7.3 Ecoulements bidimensionnels dans une géométrie à cylindres excentrés 158

7.4 Conclusion 170

7.1 Rhéologie des fluides utilisés

Les trois fluides utilisés ont des comportements rhéologiques différents :

- un fluide newtonien : Emkarox®,
- un fluide peu rhéofluidifiant : CMC3% [1],
- un fluide fortement rhéofluidifiant : Xanthane0.5% [2].

La caractérisation rhéologique de ces fluides est réalisée à partir des échantillons prélevés dans la géométrie de cylindres coaxiaux. Les mesures rhéologiques et de champs de vitesse sont effectuées simultanément et à la même température $21°C$. Afin de s'assurer que le fluide n'évolue pas au cours du temps, plusieurs échantillons ont été prélevé au cours des mesures de champs de vitesse.

7.1.1 Procédure

La préparation de chaque matériau a été décrite dans le chapitre 1. Les mesures rhéologiques sont effectuées dans les mêmes conditions : géométrie cône-plan (60mm, 2°), atmosphère saturé, rhéomètre AR2000. La procédure de mesure est la suivante :

- pré-cisaillement (1 minute) : nous appliquons un échelon de contrainte de cisaillement important σ_{max} pendant une minute, (voir chapitre 4)
- un temps de repos (2 minutes) : le matériau se restructure éventuellement et au bout de deux minutes, il acquière un état structurel que nous appelons **état de référence**,
- échelons de contrainte de cisaillement successifs montée-descente (1 minute chacun) : nous appliquons des échelons de contraintes successifs à partir de la contrainte nulle jusqu'à la valeur maximale délimitée par l'outil de mesure §.1.2. Ces échelons sont appliqués en montée et en descente ($\sigma : 0 \rightarrow \sigma_{max} \rightarrow 0$).

7.1.2 Courbes d'écoulement

Les courbes rhéologiques obtenues représentant la viscosité stationnaire en fonction de la contrainte de cisaillement[3], sont représentées sur la figure Fig.7.1 pour le Emkarox® et le CMC 3%, et sur la figure Fig.7.2 pour le Xanthane 0.5%. Concernant le fluide newtonien, la viscosité est constante $\eta = 1.15 Pa.s$ et nous avons vérifié qu'il ne présente pas d'élasticité. Pour les autres fluides, nous avons ajusté aux données le modèle de Cross par la méthode des moindres carrés, :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + (\lambda\dot{\gamma})^n}$$

[1] Dont la caractérisation viscoélastique est présentée dans l'annexe B Fig.B.1

[2] Dont la caractérisation viscoélastique est présentée dans l'annexe B Fig.B.2

[3] Les courbes obtenues ne présentent pas de caractère thixotrope à l'échelle de temps étudiée (1min)

où n est une constante, λ est un temps caractéristique de relaxation, $\dot{\gamma}$ est la vitesse de cisaillement, η_0 et η_∞ sont respectivement la viscosité à cisaillements nul et infini.

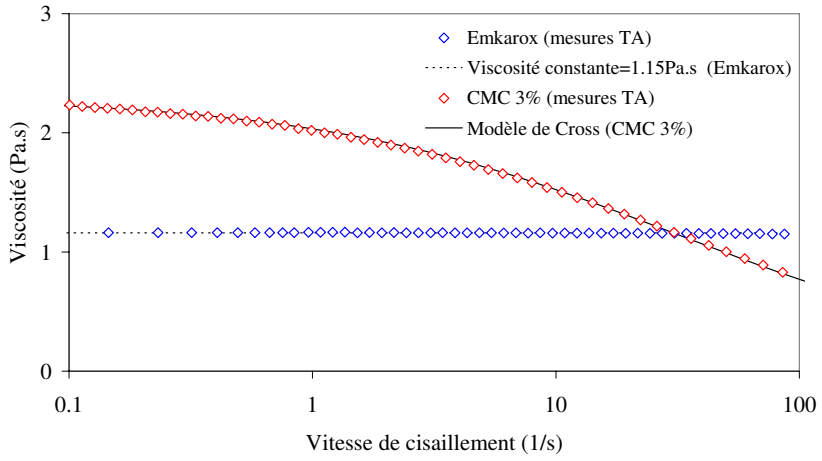


FIG. 7.1: *Comportement rhéologique du Emkarox ® et du CMC 3%. Mesures réalisées avec le rhéomètre AR2000 et la géométrie cône-plan.*

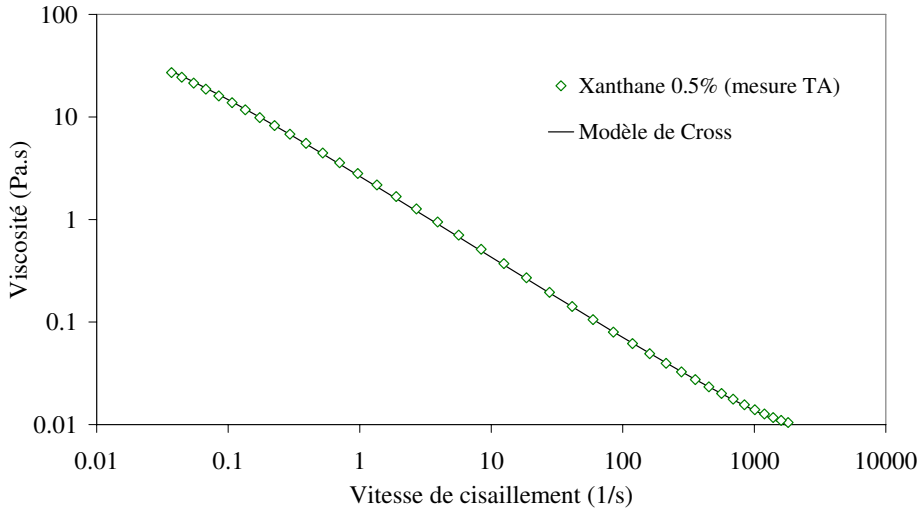


FIG. 7.2: *Comportement rhéologique du Xanthane0.5%. Mesures réalisées avec le rhéomètre AR2000 et la géométrie cône-plan.*

Ce modèle décrit de manière satisfaisante les différents comportements des fluides étudiés, les paramètres obtenus pour chaque fluide sont donnés dans la table Tab.7.1 [4]. La comparaison entre le comportement du CMC 3% et du Xanthane 0.5% dans une gamme de vitesse de cisaillement $\dot{\gamma} \in [0.1, 100]$ montre que le CMC est un matériau peu rhéofluidifiant puisque sa viscosité diminue

[4]Dans le cas du CMC, ces paramètres sont valables pour une gamme de vitesse de cisaillement $\dot{\gamma} \leq 200s^{-1}$ à cause de la limite expérimentale des mesures rhéométriques.

d'environ $1Pa.s$ dans cette gamme. Par contre, la viscosité du Xanthane perd deux à trois ordres de grandeur pour la même gamme de vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$, ce qui montre le caractère très rhéofluidifiant du Xanthane.

	η_0 (Pa.s)	η_∞ (Pa.s)	λ (s^{-1})	n
CMC 3%	2.27	0.001	0.032	0.59
Xanthane 0.5%	107	0.003	99.16	0.8

TAB. 7.1: *Paramètres du modèle de Cross.*

Dans la suite, nous présentons les résultats expérimentaux et numériques obtenus pour chaque fluide étudié, dans des géométries à cylindres centrés et excentrés. Concernant les simulations numériques, nous avons dessiné et maillé les différentes géométries sur Gambit dans l'Annexe B.

7.2 Ecoulements bidimensionnels dans une géométrie à cylindres coaxiaux

Nous avons obtenu les champs de vitesse bidimensionnels par la procédure décrite dans le chapitre 6 (§.6.3).

7.2.1 Résultats

Dans le cas des mesures effectuées sur du Emkarox ® et du CMC 3%, une seule mesure a suffi pour déterminer le champs de vitesse. Dans le cas du Xanthane il a fallu trois mesures pour obtenir un seul champs de contrainte, ceci sera détaillé plus loin.

Les profils de vitesse obtenus sont comparés aux profils calculés par Fluent en introduisant la loi de comportement (Tab.7.1) de chaque fluide dans le logiciel ainsi que les conditions aux limites (vitesse de rotation Ω du cylindre intérieur, Annexe B).

7.2.1.1 Fluide Newtonien : Emkarox ®

Les champs de vitesse sont réalisés pour différentes vitesses de rotation du cylindre intérieur $\Omega = 1$, 3, 5, et $10rad/s$. Les profils de vitesse expérimentaux obtenus sont représentés sur la figure Fig.7.3, avec les simulations numériques et les profils de vitesses théoriques (courbes en pointillées). Les courbes obtenues par Fluent sont confondues avec le calcul analytique.

Bien que les résultats montrent une difficulté de mesure près des parois (cylindre intérieur et extérieur), l'erreur de mesure reste faible (2.5%) et les résultats sont en très bon accord avec les

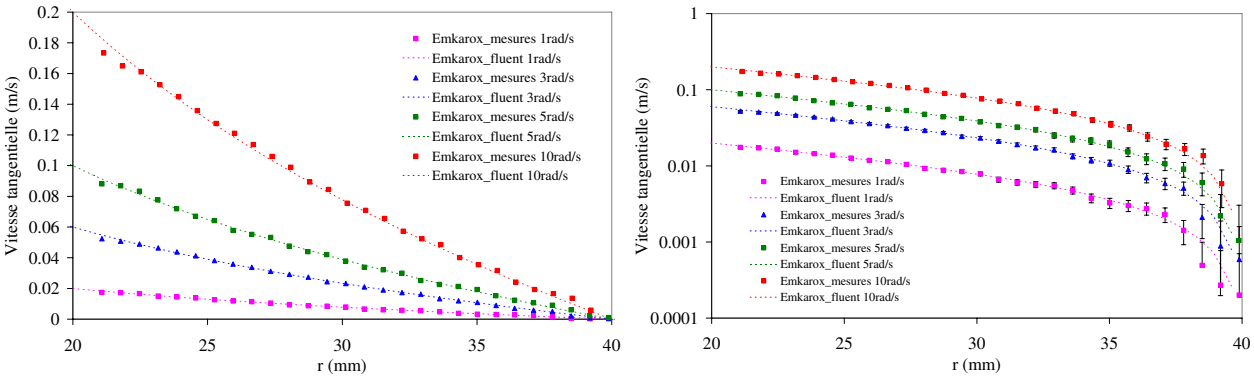


FIG. 7.3: *Profils de vitesse obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le Emkarox ® pour des vitesses de rotation du cylindre intérieur* $\Omega = 1, 3, 5,$ *et* $10 rad/s$.

valeurs théoriques.

7.2.1.2 Carboxylméthylcellulose : CMC 3%

De même, nous avons réalisé des champs de vitesse avec le CMC 3% pour différentes vitesses de rotation $\Omega = 1$, 3, 5, et 10 rad/s. Les profils de vitesse sont représentés sur la figure Fig.7.4.

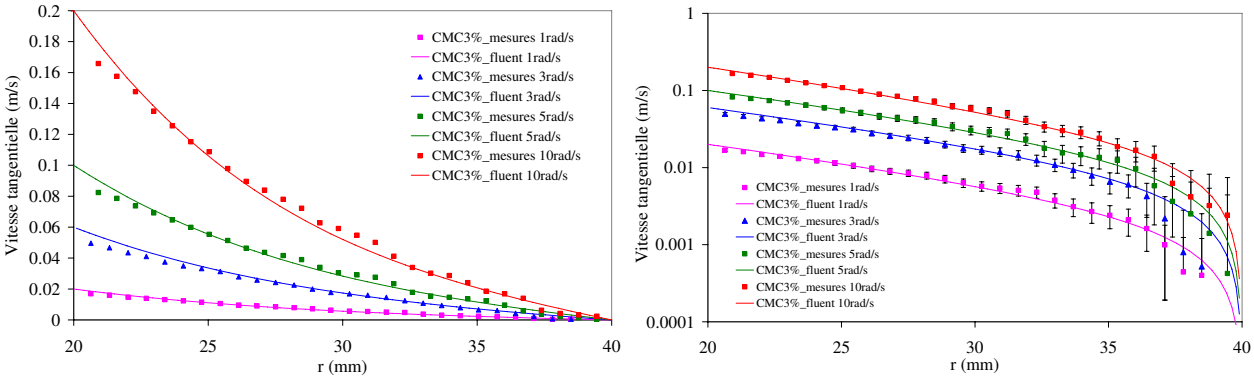


FIG. 7.4: *Profils de vitesse obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le CMC 3% pour des vitesses de rotation du cylindre intérieur* $\Omega = 1, 3, 5,$ *et 10 rad/s.*

Les résultats présentent des fluctuations visiblement plus importantes (une erreur qui peut atteindre 6%) que celles constatées pour le fluide newtonien. Ceci peut être dû à la présence d'un gradient de vitesse plus important dans l'entrefer. Cependant, les points de mesure décrivent les mêmes profils que ceux calculés par Fluent. Les mesures et les simulations numériques sont en bon accord. En d'autres termes, le modèle de Cross décrit de manière satisfaisante le comportement du CMC en écoulement.

7.2.1.3 Xanthane 0.5%

Dans le cas du Xanthane 0.5%, de très forts gradients de vitesse apparaissent à cause du caractère très rhéofluidifiant du Xanthane. C'est pour cela que nous avons effectués trois mesures pour obtenir un seul champs de vitesse : une première mesure permettant d'obtenir les faibles gradients de vitesse (très faibles vitesses) pour $r \geq r^{**}$, une deuxième pour les gradients moyens (petites vitesses) pour $r^* \leq r \leq r^{**}$, et une troisième pour les très forts gradients de vitesse (grandes vitesses) $r \leq r^*$. r^* et r^{**} étant deux positions fixes de r avec $r^* \prec r^{**}$ (Fig.7.5, Fig.7.6).

Nous avons réalisé des mesures pour deux vitesses de rotation du cylindre intérieur : $\Omega = 1$ et $10 rad/s$, les résultats obtenus ainsi que les simulations numériques (modèle de Cross) correspondantes sont représentés sur les figures : Fig.7.5 et Fig.7.6.

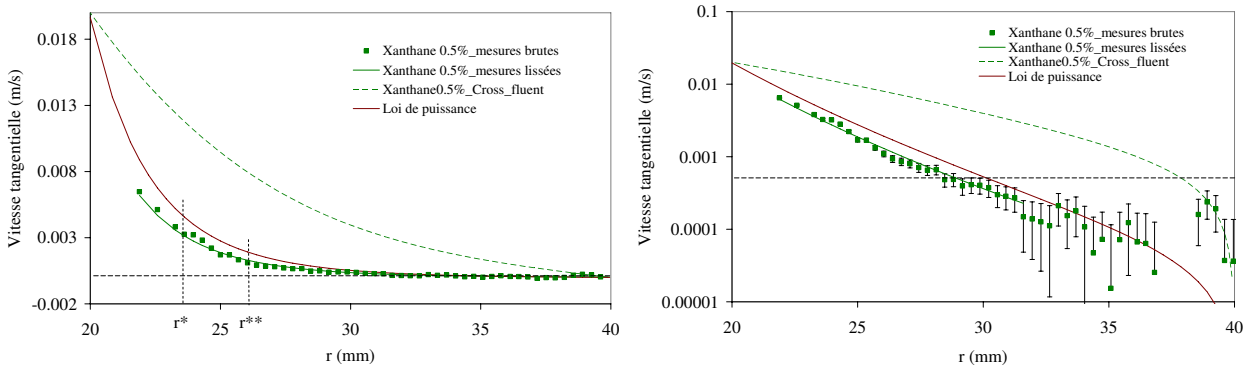


FIG. 7.5: *Profils de vitesses obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le Xanthane 0.5% avec une vitesse de rotation du cylindre intérieur $\Omega = 1 rad/s$.*

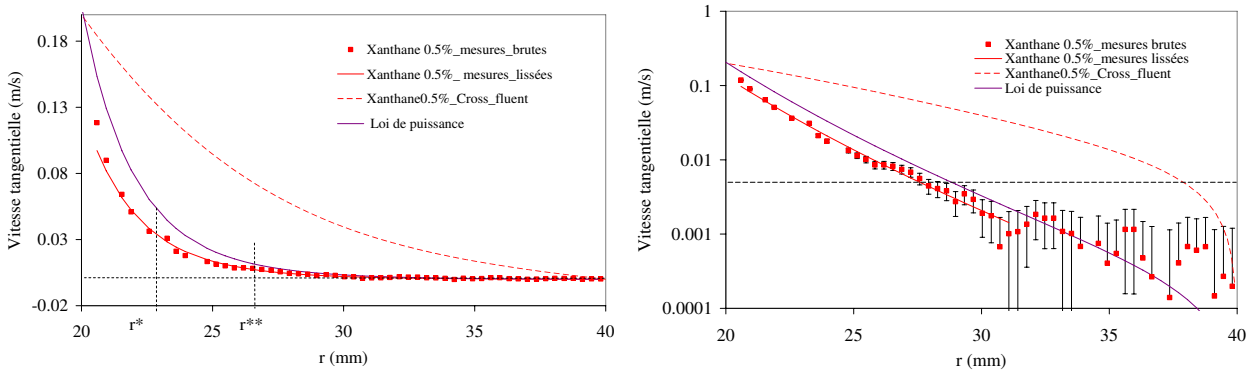


FIG. 7.6: *Profils de vitesses obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le Xanthane 0.5% avec une vitesse de rotation du cylindre intérieur $\Omega = 10 rad/s$.*

Les profils de vitesse pour des vitesses de rotation du cylindre intérieur $\Omega = 1$ et $10 rad/s$ décrivent un fort gradient de vitesse près du cylindre intérieur en mouvement (Fig.7.6, Fig.7.5),

puisque la vitesse passe de 0.12m/s à 0.04m/s en 5mm (25% de l'entrefer). Nous obtenons des valeurs très petites de la vitesse pour des positions supérieures à environ $r_y \sim 30mm$. Lorsque $\Omega = 10rad/s$, les points de mesures pris en compte sont celles dont la valeur est supérieure ou égale à $0.003m/s$, en dessous de cette valeur, l'erreur de mesure devient importante (Fig.7.6). Lorsque $\Omega = 1rad/s$, les points pris en compte sont ceux dont la valeur est supérieure ou égale à $0.0007m/s$. En dessous de cette valeur, la technique ne permet pas une mesure correcte (Fig.7.5).

De façon très surprenante, les profils de vitesse obtenus par Fluent ne décrivent pas du tout le comportement du fluide dans l'entrefer. Les simulations ne sont pas en accord avec les mesures dans le cas du Xanthane bien que le modèle utilisé (Cross à trois paramètres) décrit parfaitement la loi de comportement rhéologique du matériau (Fig.7.2). Cependant, nous avons ajusté les points de mesure par une courbe de loi de puissance [122] (Eq.7.1). Cette loi ne décrie pas les profils de vitesses mesurés [5].

$$v_\theta(r) = \frac{n}{2}\left(\frac{\Gamma}{2\pi h k}\right)^{1/n} r\left(r^{-2/n} - R_e^{-2/n}\right) \tag{7.1}$$

où Γ est le couple appliqué. n et k sont des constantes.

Alors nous avons ajusté une fonction arbitraire en puissance (Eq.7.2) dans chaque gamme de vitesse délimitée par la validité des mesures, afin d'accéder plus finement à l'évolution de la vitesse dans l'entrefer. Les paramètres de l'ajustement sont donnés plus loin (Tab.7.4).

$$f(r) = v_\theta(r) = nC^{1/n}.r.r^{-2/n} \tag{7.2}$$

où C et n sont des constantes.

7.2.2 Comparaisons et discussions

Nous avons représenté les profils de vitesse des trois fluides étudiés : Emkarox ®, CMC 3% et le Xanthane 0.5%, sur la figure Fig.7.7 pour la vitesse de rotation $\Omega = 10rad/s$ [6].

Les profils de vitesse correspondants aux fluides : newtonien et CMC, montrent que les vitesses mesurées sont significatives dans tous l'entrefer, ce qui est en parfait accord avec les résultats de simulations en utilisant $\eta = 1.15Pa.s$ pour le fluide newtonien, et le modèle de Cross pour le CMC 3% [7](Tab.7.1). Par contre, le profil de vitesse du Xanthane présente des vitesses très faibles dans une zone de l'entrefer où $r \succ r_y \sim 30mm$, cette constatation étant valable dans les deux cas de vitesse de rotation Ω du cylindre intérieur. Dans ce cas, les résultats des simulations numériques (en utilisant le modèle de Cross (Tab.7.1)) sont très éloignés du profil expérimental. Il sont de

[5] L'Eq.7.1 est obtenue en supposant que le fluide suit une loi de puissance $\sigma = k\dot{\gamma}^n$ dans une petite gamme de vitesses de cisaillement, et en intégrant l'équation du mouvement

[6] Nous avons observé le même comportement pour les trois fluides à $\Omega = 1rad/s$.

[7] Par défaut le logiciel Fluent utilise le modèle de Cross à 3 paramètres

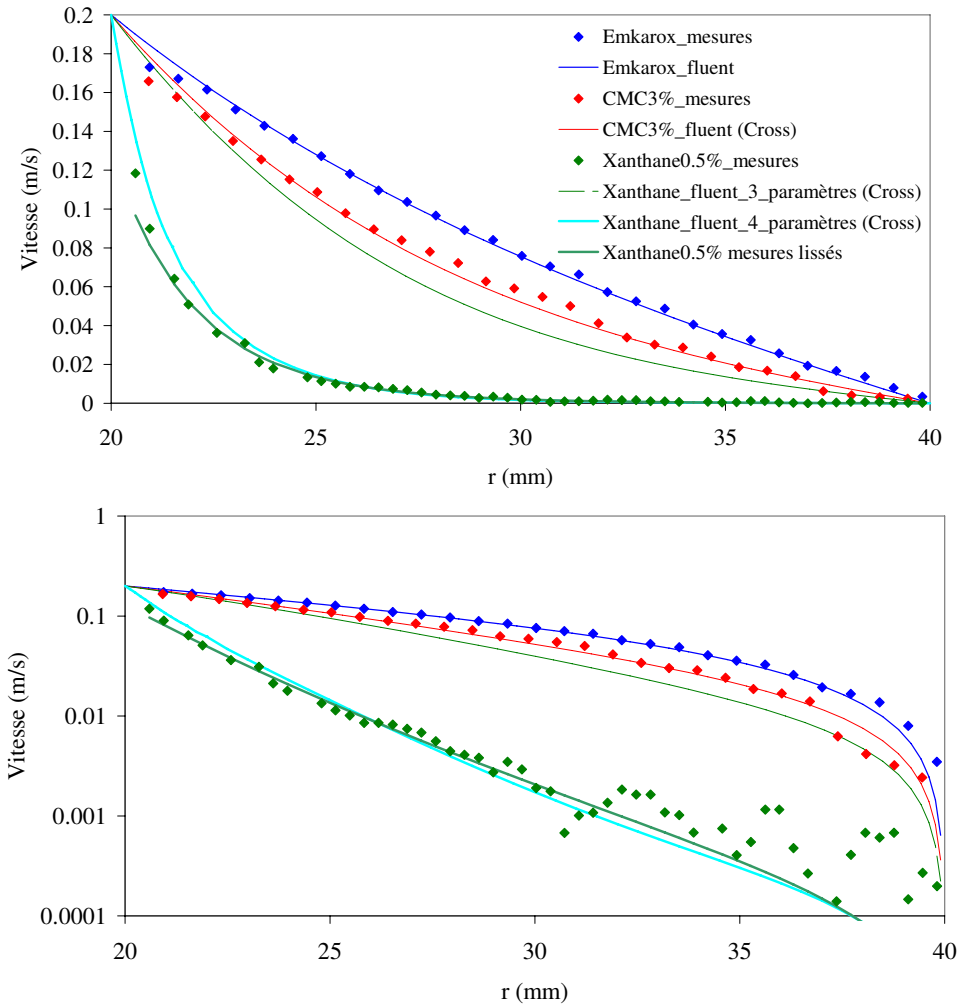


FIG. 7.7: *Profil de vitesses dans une géométrie de couette obtenues par la PIV : Emkarox®, CMC 3% et Xanthane 0.5%. Comparaison avec les profils de vitesse calculés par Fluent*

même nature que le profil du CMC 3%. Les résultats de la simulation avec le modèle de Cross à 4 paramètres (en utilisant les UDF dans le logiciel Fluent) donnent un profil proche des mesures expérimentales (Fig.7.7). Ce résultat est surprenant car l'écart maximum en viscosité entre le modèle à 3 paramètres et celui à 4 paramètres n'est que de 5%. Ceci montre la sensibilité du calcul aux paramètres rhéologiques. Pour étudier de plus près le comportement du Xanthane et à cause du bruit expérimental, nous avons cherché une fonction de lissage (Eq.7.2) qui approche le mieux le profil de vitesse expérimental. Cette fonction ajustée localement sera utilisée pour la détermination des gradients de vitesses qui nécessite la dérivation de la vitesse tangentielle par rapport au rayon, les dérivations directes des profils expérimentaux étant très bruités.

7.2.3 Loi de comportement locale

Le but est de déterminer la loi de comportement locale ($\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$) déterminée à partir des champs de vitesse locaux pour la comparer avec celle obtenue par des mesures rhéométriques sur une géométrie cône-plan. Pour cela, nous avons besoin du champ de contrainte et de vitesse de cisaillement pour chaque fluide étudié. Le champs de contrainte est connu puisqu'il est défini dans une géométrie de Couette à cylindres coaxiaux par :

$$\sigma = \frac{\Gamma}{2\pi h r^2} \tag{7.3}$$

où Γ est le couple sur le cylindre intérieur, r le rayon et h est la hauteur des cylindres.

A partir de mesure de couple, la contrainte en chaque point de l'entrefer est calculée en faisant varier le rayon r entre le rayon intérieur R_i et extérieur R_e.

Le gradient de vitesse est, quant à lui, défini dans cette géométrie par [4] :

$$\dot{\gamma}(r) = \left| r\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{V_\theta}{r}\right)\right| = \left|\frac{\partial V_\theta}{\partial r} - \frac{V_\theta}{r}\right| \tag{7.4}$$

où V_θ représente la vitesse tangentielle et r est le rayon. Par conséquent, le gradient de vitesse est obtenu directement à partir des profils de vitesses en calculant la dérivée (par différences finis). Cette opération est réalisée par l'utilisation de la pente moyenne calculée sur trois points adjacents à la position r_i :

$$\dot{\gamma}(r_i) = \frac{V_\theta(r_{i+1}) - V_\theta(r_{i-1})}{2\Delta r} \tag{7.5}$$

où $\Delta r = \frac{1}{2}(r_{i+1} - r_{i-1})$ est la distance entre deux positions de mesures.

Dans ce qui suit, nous présentons la loi de comportement $\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$ obtenue par :

- la dérivée des mesures brutes,
- la dérivée des mesures lissées : nous entendons par « lissées » les profils de vitesse donnés par le calcul de Fluent pour le fluide newtonien et le CMC3%. Dans le cas du Xanthane, les profils obtenus par la loi de puissance (Eq.7.2), dans la gamme où les mesures sont fiables.
- la loi de comportement donnée par les mesures sur le rhéomètre $AR2000$ en utilisant une géométrie cône-plan.
- le modèle de Cross approprié au mesures rhéologiques.

7.2.3.1 Fluide Newtonien : Emkarox®

Dans le tableau Tab.7.2, nous avons présenté les gammes de vitesse de cisaillement correspondantes chacune à une vitesse de rotation du cylindre intérieur Ω pour le Emkarox®.

$\Omega(rad/s)$	$\dot{\gamma}(s^{-1})$
1	$[0.6-2.5]$
3	$[2-7]$
5	$[3-15]$
10	$[6-20]$

TAB. 7.2: *Gamme de vitesse de cisaillement dans l'entrefer pour l'Emkarox®.*

Pour chaque gamme de vitesse de cisaillement, la loi de comportement locale déterminée à partir des valeurs de vitesses brutes décrit un nuage de points. Ceci est dû à la dérivée dans le calcul de la vitesse de cisaillement (fluctuation des mesures). Quant à la loi de comportement déterminée par les profils de vitesses « lissées » elle est parfaitement superposée à celle décrite par les mesures rhéométriques (Fig.7.8). Les quatre courbes correspondantes chacune à une gamme de vitesse de cisaillement (pour chaque vitesse Ω) décrivent une gamme complète de cisaillement ($[0.6-20]s^{-1}$) et sont parfaitement superposées à la loi de comportement linéaire $\sigma = 1.15\dot{\gamma}$ du Emkarox ®. Ce résultat montre que, pour le fluide newtonien, nous retrouvons bien la loi de comportement à partir des mesures de vitesses locales par la PIV dans l'entrefer. Ce résultat valide à nouveau le dispositif expérimental utilisé.

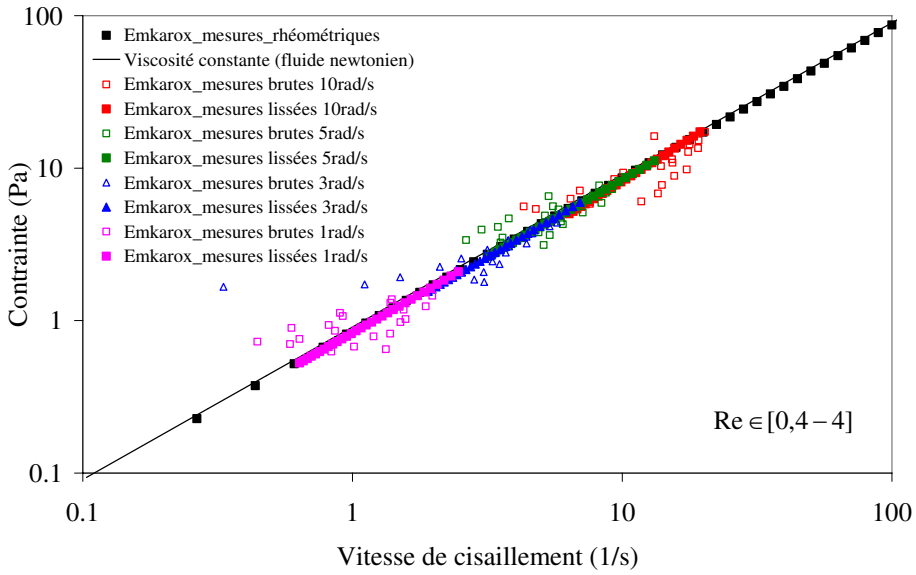


FIG. 7.8: *Lois de comportement déterminées pour le Emkarox ®*

7.2.3.2 Fluide faiblement rhéofluidifiant : CMC 3%

Dans le tableau Tab.7.3, nous avons présenté les gammes de vitesse de cisaillement correspondantes chacune à une vitesse de rotation du cylindre intérieur Ω pour le CMC 3% [8].

$\Omega(rad/s)$	$\dot{\gamma}(s^{-1})$
1	$[0.4-3]$
3	$[1-9]$
5	$[2-15]$
10	$[3.5-35]$

TAB. 7.3: *Gamme de vitesse de cisaillement dans l'entrefer pour le CMC 3%.*

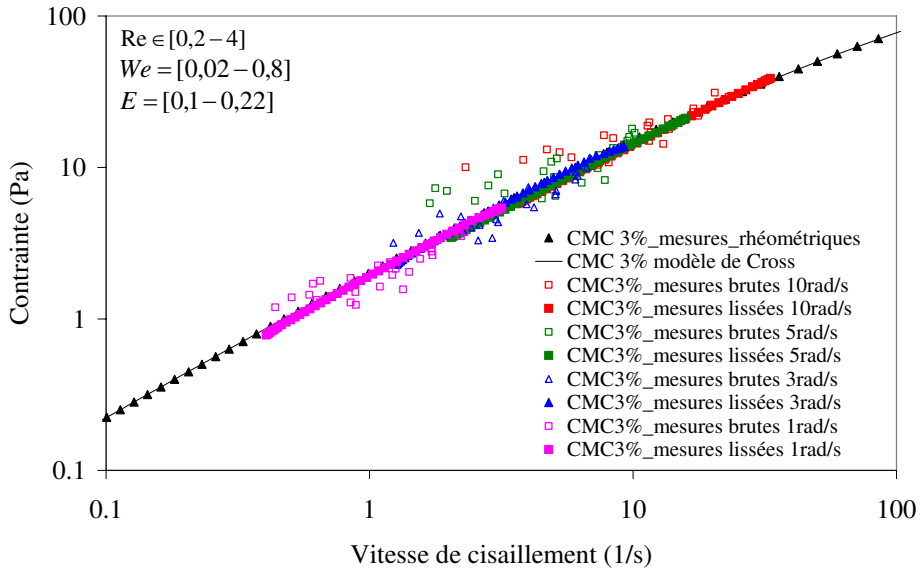


FIG. 7.9: *Lois de comportement déterminées pour le CMC 3%*

De même que le fluide newtonien, pour chaque vitesse Ω du cylindre intérieur, la loi de comportement locale déterminée à partir des valeurs de vitesses brutes décrit un nuage de points autour de la loi donnée par le rhéomètre. La loi de comportement locale déterminée par les profils de vitesse « lissées » est parfaitement superposée à celle des mesures rhéométriques (Fig.7.9). Les quatre courbes correspondant chacune à une gamme de vitesse de cisaillement (pour chaque vi-

[8] Les nombres adimensionnels (Weissenberg et élastique) sont calculé en utilisant le temps caractéristique viscoélastique $t_{v.e} = \eta_2/G$ déterminé par la méthode décrite dans le chapitre 4. Les paramètres η_2 et G sont donnés dans l'Annexe B.

tesse Ω) décrivent une gamme de vitesse de cisaillement complète ($[0.4-35]s^{-1}$). Ces courbes sont parfaitement superposées à la loi de comportement du CMC 3% donnée par la rhéométrie. Nous montrons ainsi que le modèle de Cross décrit de manière satisfaisante le comportement du CMC 3% en écoulement.

7.2.3.3 Fluide fortement rhéofluidifiant : Xanthane 0.5%

La figure Fig.7.10 représente la vitesse en fonction de la contrainte locale correspondante à chaque position r de l'entrefer pour l'écoulement du Xanthane. Cette figure montre une continuité des mesures pour $\Omega = 1rad/s$ et $\Omega = 10rad/s$, elle montre aussi que pour tout rayon supérieur à environ $30mm$ (chaque position r est représentée par la contrainte correspondante), la vitesse locale devient du même ordre de grandeur que les erreurs de mesures ($\leq 0.0007m/s$). Même si les mesures de la vitesse ne sont prises en compte qu'au delà de $0.0007m/s$, nous constatons une tendance générale décroissante de la vitesse (sur le graphe en semi-log (Fig.7.10)).

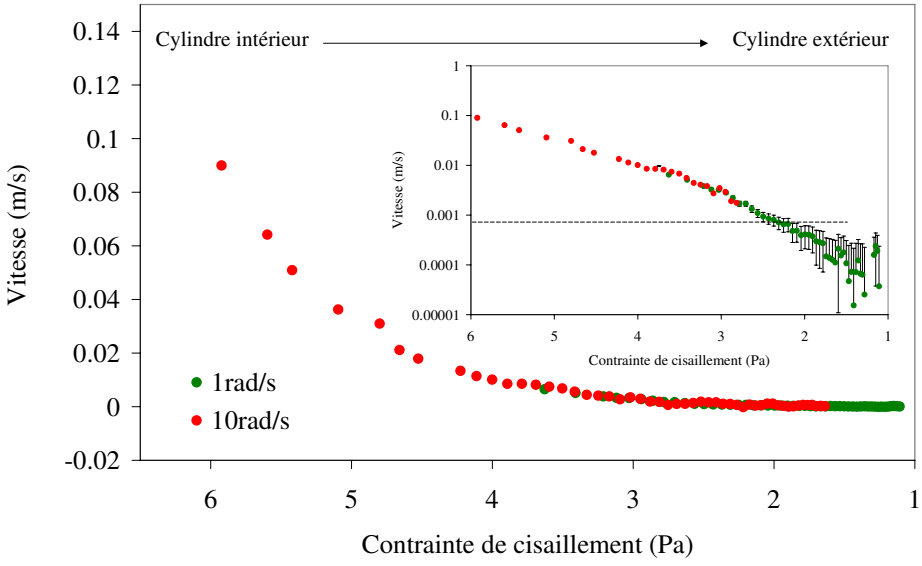


FIG. 7.10: *Profil de vitesse en fonction de la contrainte locale du Xanthane* 0.5%.

Nous avons présenté les deux gammes de vitesse de cisaillement correspondantes chacune à une vitesse de rotation du cylindre intérieur Ω, dans le tableau Tab.7.4. Nous avons ajusté, par la méthode des moindres carrés, la fonction de lissage $f(r)$ donnée par l'équation Eq.7.2.

La loi de comportement locale déterminée à partir des valeurs de vitesses brutes décrit un nuage de points autour de la loi donnée par le rhéomètre. La loi de comportement locale déterminée par les profils de vitesse lissés pour chacune des deux gammes de vitesse de cisaillement ($\dot{\gamma} \in [0.7-4]s^{-1}$ et $[3-60]s^{-1}$), donne une droite pratiquement superposée à la loi de comportement donnée par la

$\Omega(rad/s)$	$v_\theta(m/s)$	$\dot{\gamma}(s^{-1})$	$k(Pa.s^n)$	n	C
1	$[0.0007 - 0.01]$	$[0.7 - 4]$	2.85	0.2	$5,2.10^{-4}$
10	$[0.003 - 0.1]$	$[3 - 60]$	4.55	0.18	$7,6.10^{-4}$

TAB. 7.4: *Paramètres du modèle de loi de puissance dans deux gammes de vitesse de cisaillement ainsi que ceux de la foction ajustée, pour le Xanthane*0.5%.

rhéométrie (Fig.7.11). Malgré la présence d'un gradient de vitesse très important dans l'entrefer, nous obtenons un accord remarquable entre la loi de comportement obtenue par rhéométrie standard et celle obtenue par mesure des champs de vitesse. Ceci indique que le matériau ne glisse pas, ne fracture pas, et semble ne pas avoir de contrainte seuil. Par contre le rhéomètre est capable de mesurer des vitesses de cisaillement jusqu'à $0.03s^{-1}$, les résultats permettent alors de déterminer la loi de comportement rhéométrique pour $\dot{\gamma} \in [0.1 - 0.7]s^{-1}$.

Notons que les simulations numériques sur Fluent avec différents modèles (puissance, Herschel-Bulkley, Cross) en utilisant différents paramètres, n'ont pas permis de prédire le profil des vitesses locales du Xanthane 0.5% dans l'entrefer.

7.2.4 Bilan

L'utilisation de la PIV a permis de mesurer les champs de vitesses dans l'entrefer de la géométrie à cylindre coaxiaux. Les profils de vitesses mesurés apportent des informations complémentaires aux mesures rhéologiques (dans le cône-plan), dans la gamme de vitesses de cisaillement $[0.1 - 100]s^{-1}$. La distribution du champ de contraintes étant connu dans tous l'entrefer de la géométrie de Couette, nous avons pu déduire la loi de comportement locale et comparer le comportement de chaque fluide dans deux géométries différentes : cône-plan et Couette à entrefer large.

Tout d'abord, les résultats obtenus montrent un excellent accord, pour les matériaux utilisés entre les deux méthodes. Nous voyons ainsi que, la loi de comportement obtenue en cisaillement simple et homogène en géométrie cône-plan est identique à celle obtenue par la mesure des champs de vitesse en géométrie cylindrique coaxiale où le gradient de vitesse est non homogène.

Dans le cas du fluide newtonien, les résultats montrent que le comportement du fluide est indépendant du confinement. La relation entre la contrainte et la vitesse de cisaillement reste linéaire quelque soit l'entrefer (cône-plan et Couette).

Dans le cas du fluide peu rhéofluidifiant (CMC 3%), nous avons également retrouvé la loi de comportement donnée par la rhéomètrie. Ceci montre que le CMC 3% a un comportement,

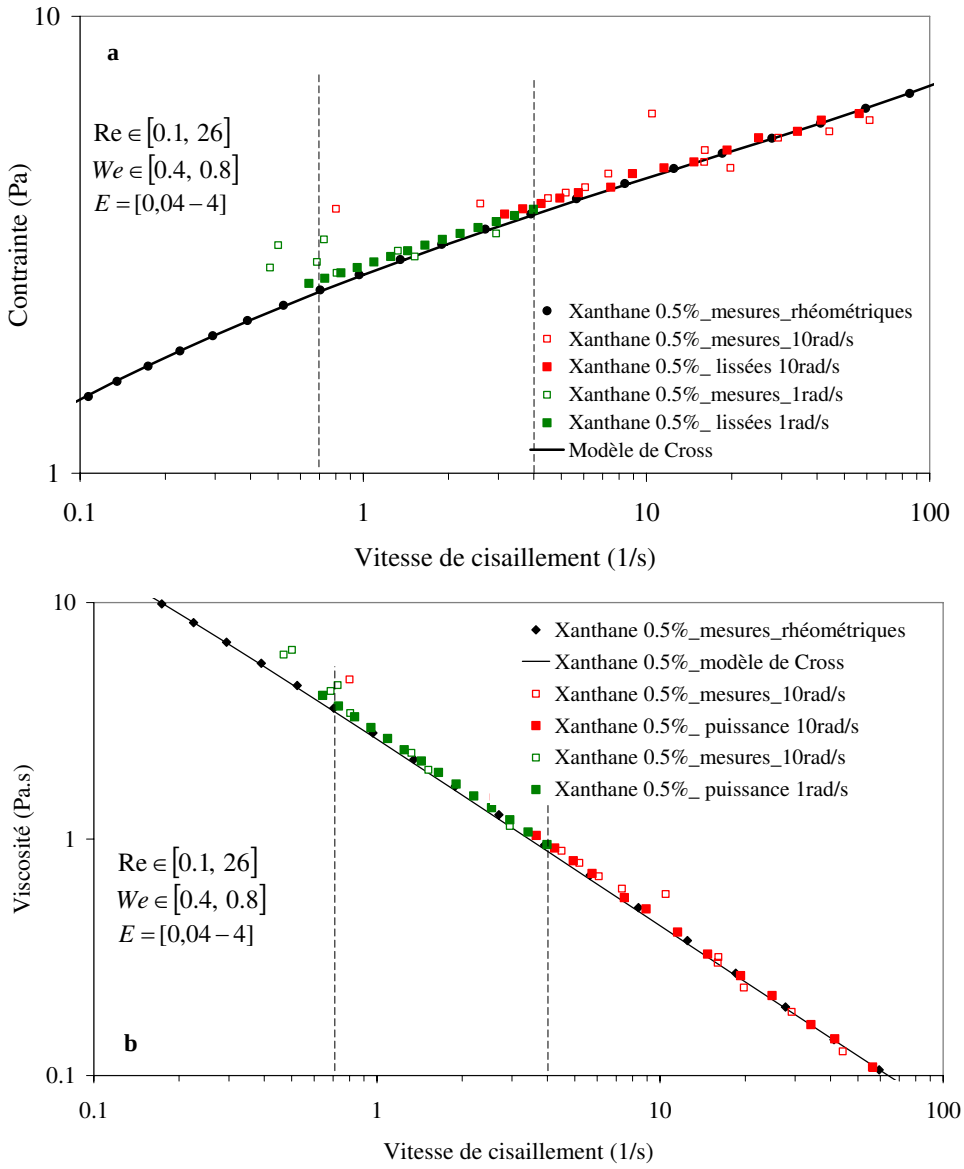


FIG. 7.11: *Loi de comportement déterminée pour le Xanthane* 0.5%

décrit par une loi de Cross, identique aussi bien dans un petit (cône-plan) et un grand entrefer (Couette). Il est à noter que les macromolécules du CMC sont petites de l'ordre de 30 nanomètres, donc la conformation des macromolécules est la même quelque soit l'entrefer. Il en résulte que le comportement macroscopique du CMC est également indépendant du confinement. Pour ce matériau le code Fluent permet de prédire l'écoulement dans la géométrie de Couette, à l'aide du modèle de Cross.

Par contre, dans le cas du Xanthane, les simulations numériques n'ont pas permis de décrire le comportement du matériau dans le grand entrefer, que ce soit avec le modèle de Cross (à trois paramètres) ou celui de Herschel-Bulkley. L'ajustement des profils de vitesse, avec une courbe de

lissage, dans deux gammes de vitesses de cisaillement, a permis de retrouver la loi de comportement locale du Xanthane. Cette dernière est pratiquement superposée à la loi de comportement globale. Nous avons ainsi montré que le matériau se comporte de la même façon dans le petit et le grand entrefer pour $\dot{\gamma} \in [0.7 - 60]s^{-1}$. Ceci s'explique par le fait que les macromolécules du Xanthane (de l'ordre de 100 nanomètres) se trouvent dans la même conformation dans le petit et le grand entrefer. Enfin, ces résultats montrent que malgré son caractère très rhéofluidifiant, le Xanthane 0.5% ne glisse pas, ne fracture pas et reste homogène dans l'entrefer.

7.3 Ecoulements bidimensionnels dans une géométrie à cylindres excentrés

Dans cette partie de notre étude, nous avons cherché à décrire et à comparer les comportements des différents fluides dans la configuration des cylindres excentrés. Nous citons les rares études à ce sujet réalisées par de Shaqfeh et Dris [114, 113], et Berker qui ont étudié l'écoulement dans des géométries à faibles courbures ($\epsilon = e/R_i = 0.13$ et $\epsilon = 0.2$) [9], ils ont utilisé la technique de LDV pour mesurer le profil de vitesses sur un rayon choisi. Notre dispositif, quant à lui, permet d'avoir le champ de vitesses dans tout l'entrefer, pour une plus grande courbure $\epsilon = 1$. De plus, des simulations numériques avec le code Fluent sont comparés aux champs de vitesse expérimentaux pour chaque fluide étudié.

Dans ce qui suit, nous nous intéresserons aux écoulements moyens des trois fluides étudié (Emkarox, CMC 3% et Xanthane 0.5%), dans différentes géométries chacune est caractérisée par son excentricité δ ($\delta = d/R_i$).

7.3.1 Fluide newtonien : Emkarox®

Nous présentons sur la figure Fig.7.12, les lignes de courant pour différentes configurations de géométries : a) $\delta = 0.25$, b) $\delta = 0.5$ et c) $\delta = 0.75$. Ces résultats sont obtenus à partir du champ de vitesse moyen calculé sur 20 mesures de champs de vitesse instantanés et établis.

L'écoulement dans la géométrie à cylindres centrés ($\delta = 0$) a été étudié dans le paragraphe précédent, nous rappelons que les lignes de courant (présentées dans le chapitre 6) sont parallèles dans tout l'entrefer. Lorsque l'excentricité δ augmente, les lignes de courant restent parallèles (Fig.7.12.a), jusqu'à une valeurs « critique » δ^* d'environ 0.4 au dessus de laquelle, nous observons un écoulement de retour et une zone de vorticité décrite par des lignes de courant fermées (Fig.7.12.b et Fig.7.12.c). La position de la zone de vorticité est centrée sur l'axe de symétrie $x = 0$

[9] e est l'entrefer moyen.

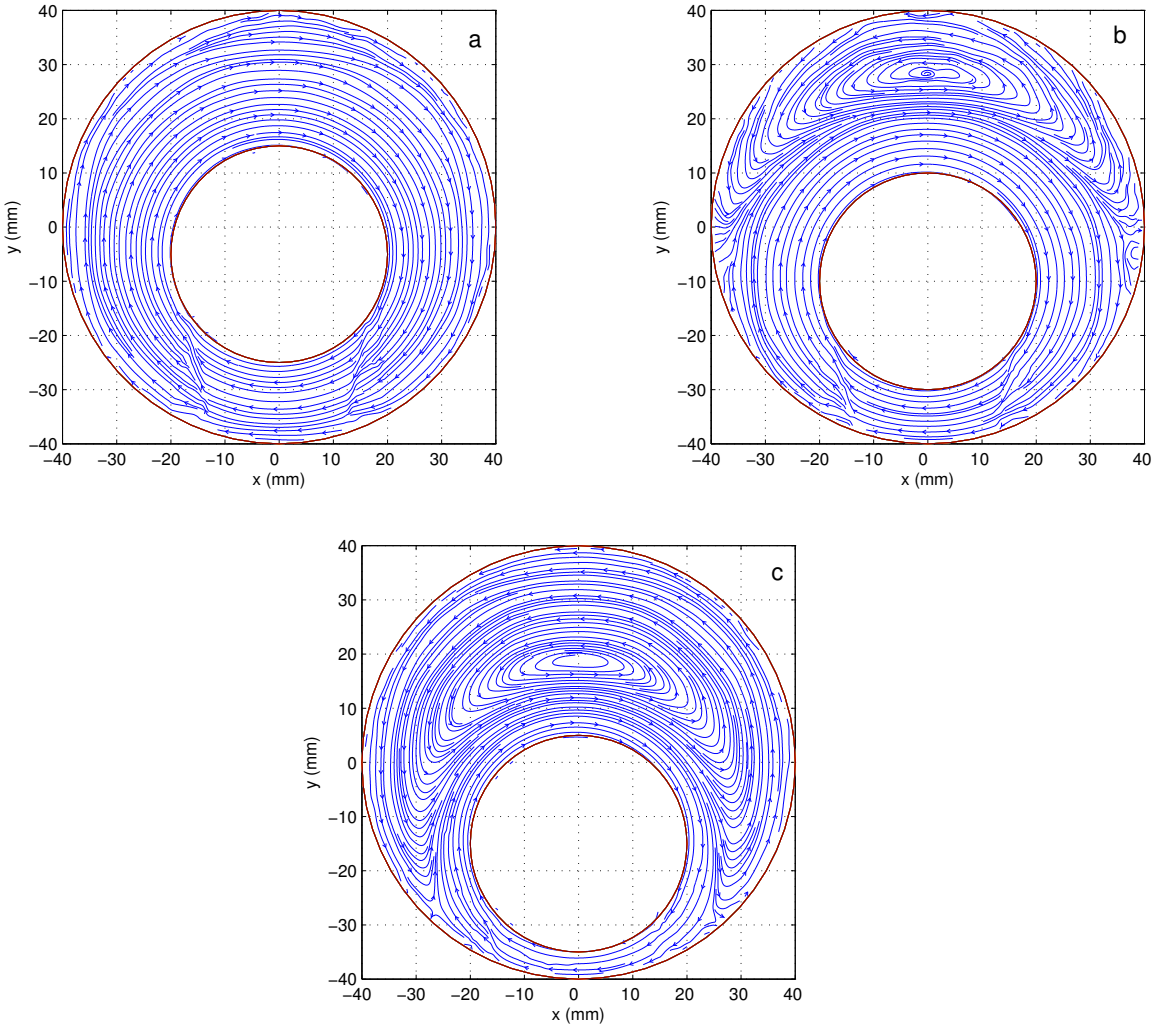


FIG. 7.12: *Mesures expérimentales : Lignes de courant pour le Emkarox®, dans des géométries de trois excentricités : a) $\delta = 0.25$, b) $\delta = 0.5$ et c) $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$*

quelque soit $\delta \succ 0.4$. Plus l'excentricité augmente, et plus la position de cette zone de vorticité s'approche du cylindre intérieur. La zone de séparation entre l'écoulement dans le sens du cylindre intérieur et l'écoulement de retour change de forme, et l'écoulement de retour occupe alors un plus grand espace dans l'entrefer Fig.7.12.c. Le même comportement de l'écoulement a été observé pour différentes vitesses de rotation du cylindre intérieur Ω.

Nous avons constaté que les mesures peuvent être perturbées par des réflexions de lumière près du cylindre extérieur ou encore par les très fort gradients de vitesse présents dans l'entrefer. Néanmoins, les résultats restent très satisfaisants.

De plus, nous avons effectué des simulations numériques sur Fluent avec un fluide newtonien

de viscosité constante $\eta = 1.15Pa.s$ (Fig.7.13) [10], les lignes de courant décrivent le même comportement que celui observé expérimentalement. Nous avons comparé les profils de vitesses mesurés et ceux calculés par Fluent dans le cas de la géométrie où l'excentricité est égale à 0.75.

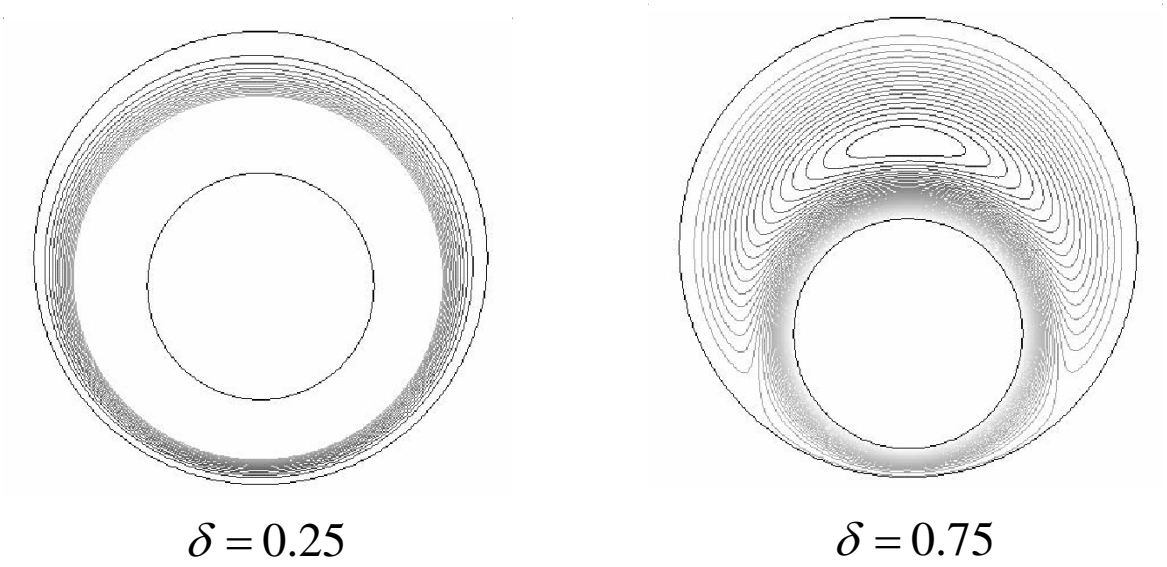


FIG. 7.13: *Simulations numériques : Lignes de courant pour le Emkarox®, dans des géométries où $\delta = 0.25$ et $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$*

Nous avons représenté les profils de vitesses tangentiels et radiales sur deux axes différents où $\theta = \pi$ et $\theta = \pi/2$ [11] (Fig.7.14).

La figure Fig.7.15 présente les profils des vitesse tangentielle v_θ sur le demis axe positif $[0, y^+[$ où $\theta = \pi/2$ (la vitesse radiale v_r est nulle), pour différentes vitesses de rotations Ω du cylindre intérieur. Les résultats montrent que les profils de vitesse mesurés par la PIV et calculés par Fluent sont parfaitement superposés, pour toutes les vitesses de rotation $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. Les profils décrivent une zone de vorticité $v = 0$ séparant deux écoulements : un dans le sens de la vitesse Ω près du cylindre intérieur et un écoulement de retour (dans le sens opposé) du coté du cylindre extérieur. La zone de vorticité se situe à la même position $r - R_i = 13.5mm$ pour toutes les vitesses de rotation Ω.

La figure Fig.7.16 présente les profils des vitesse tangentielle v_θ (sur **a**), et les profils de vitesses radiales v_r (sur **b**) sur le demis axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$, pour différentes vitesses de rotations Ω du cylindre intérieur. Les résultats montrent, encore une fois, que les profils de vitesses mesurés par la PIV et calculés par Fluent sont parfaitement superposés, pour toutes les vitesses de rotation

[10] Les ligne de courant dans le cas $\delta = 0.25$ n'apparaissent pas près du cylindre intérieur pour des raison d'affichage

[11] Notons que nous ne présentons pas les profils de vitesse à $\theta = -\pi/2$ car la mesure est très perturbée et la résolution dans cette zone de petit entrefer est faible.

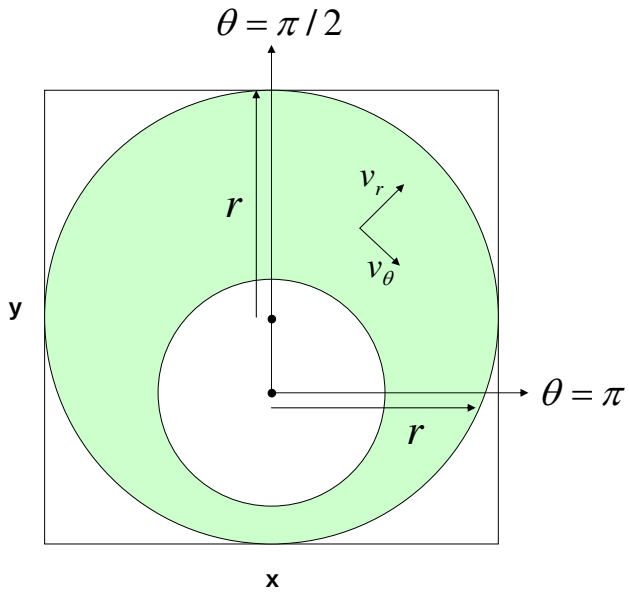


FIG. 7.14: *Géométrie excentrées à 0.75. Axes où les profils sont représentés*

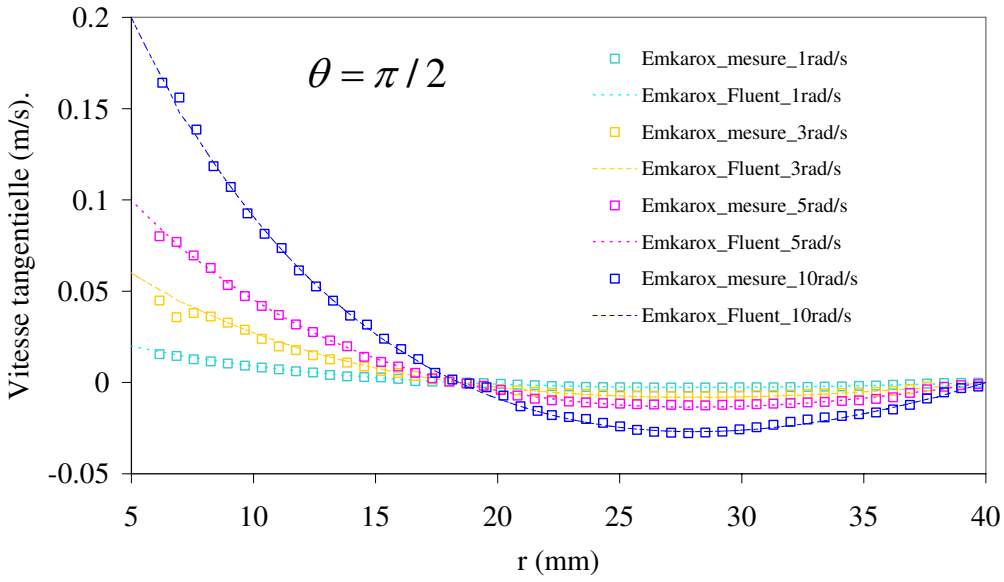


FIG. 7.15: *Emkarox® : profils de vitesse tangentielle mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demis axe positif $[0, y^+[$ où $\theta = \pi/2$, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s.*

$\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. Les profils décrivent la zone de séparation qui se situe à la même position $r - R_i = 9mm$ sur le demis axe positif $]x^+, -15]$ (Fig.7.16.a).

La figure Fig.7.17 présentant le module de la vitesse sur le demi-axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$,

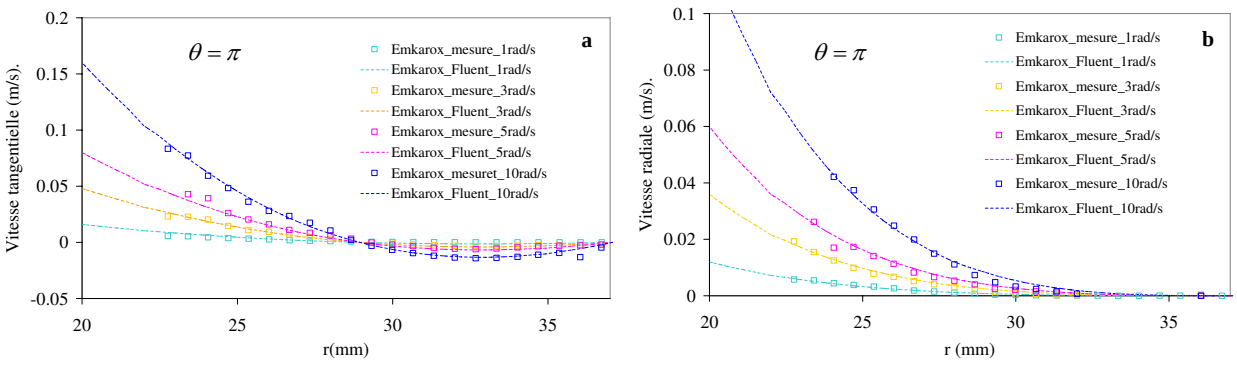


FIG. 7.16: *Emkarox® : profils de vitesse mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demis axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$: a) vitesse tangentielle. b) vitesse radiale, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s.*

confirme ces résultats, qui montrent que la prédiction et la description de l'écoulement du fluide newtonien est fiable en utilisant la viscosité constante dans le code de calcul Fluent.

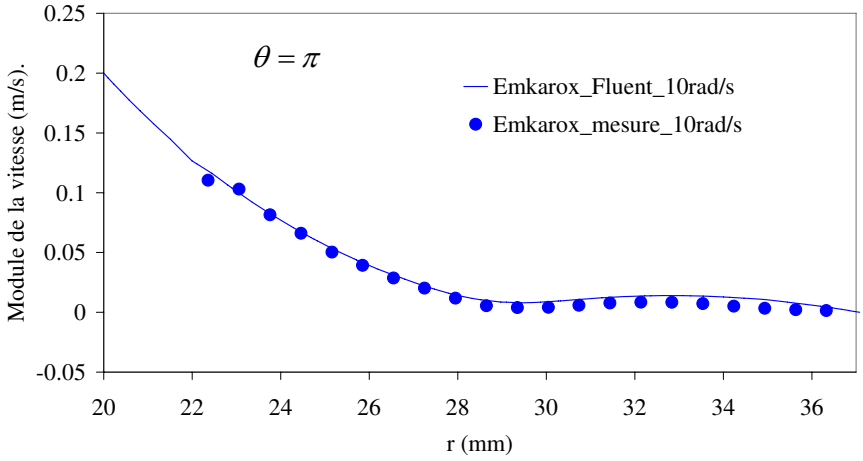


FIG. 7.17: *Emkarox® : profils de vitesse mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demis axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$: module de vitesse pour $\Omega = 10$ rad/s.*

7.3.2 Observation au cours du temps de l'écoulement dans la géométrie à forte excentricité $\delta = d/R_i = 0.75$

Nous avons observé l'écoulement au cours du temps dans la configuration où l'excentricité vaut 0.75. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure Fig.7.18.

Cette figure représente les lignes de courant obtenues par la mesure des champs de vitesse

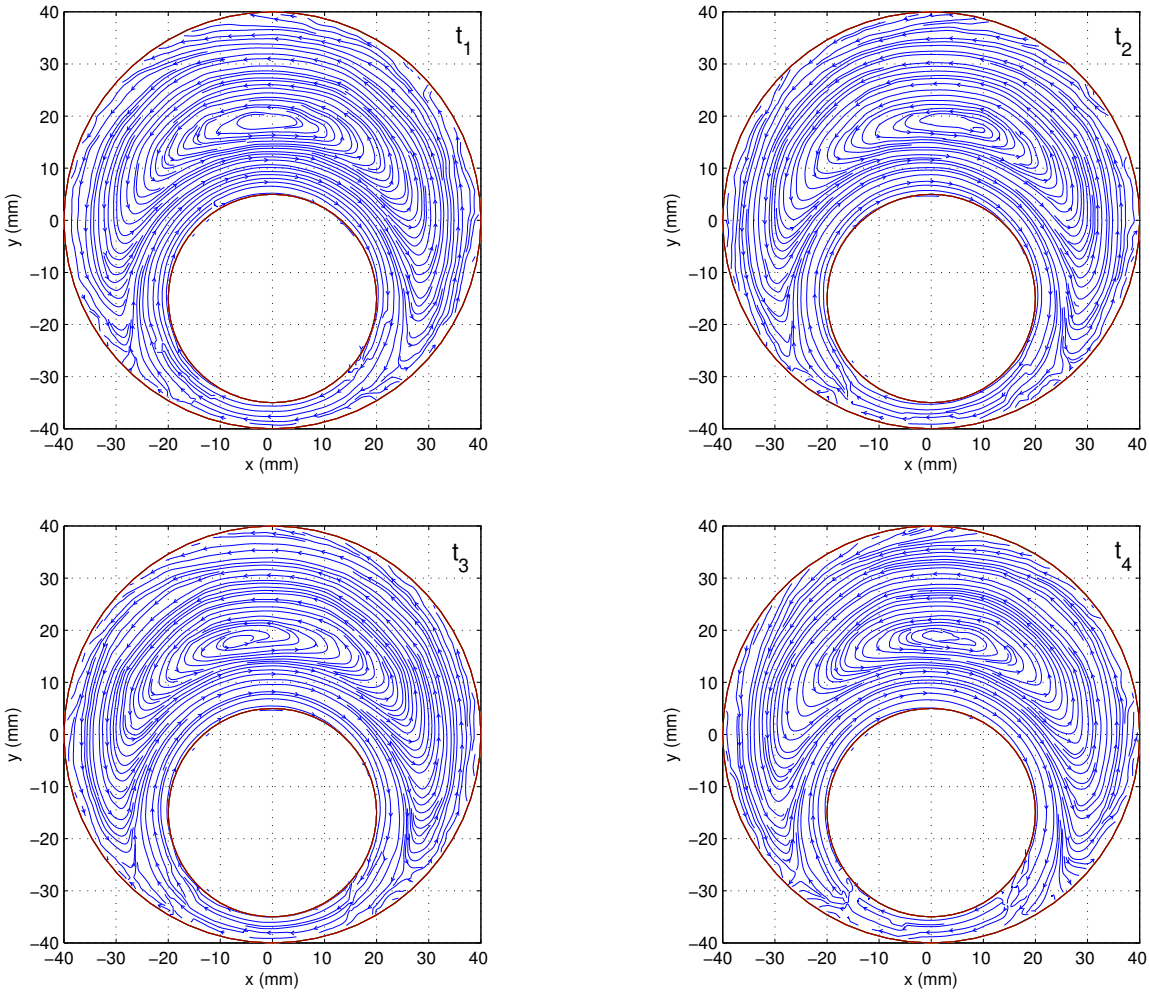


FIG. 7.18: *Emkarox® : lignes de courant observées au cours du temps :* $t_1 \prec t_2 \prec t_3 \prec t_4$.

instantanés à différents temps arbitraires $t_1 \prec t_2 \prec t_3 \prec t_4$, les temps espacés de quelques seconde typiquement. La zone de vorticité semble osciller autour de l'axe de symétrie de la géométrie $x = 0$. La mesure n'a pas permis de déterminer précisément une fréquence de ces oscillations (de l'ordre de quelques secondes). Cependant, comme nous l'avons évoqué précédemment, la valeur temporelle moyenne des champs obtenues montre que cette zone reste centrée sur l'axe de symétrie. Cette constatation est surprenante. De plus, des simulations avec Fluent sur un fluide newtonien en mode instationnaire, ne décrivent pas non plus ce phénomène. Il est possible donc que ceci est du à la rotation du cylindre intérieur qui ne tourne pas parfaitement droit autour de son axe, engendrant ainsi le déplacement de la zone de vorticité.

Notons que nous avons observé le même phénomène avec le CMC, ainsi que pour toutes les vitesses de rotation Ω (même les plus petites $(0.1 rad/s)$) et pour tout $\delta \succ 0.4$.

7.3.3 Fluide faiblement rhéofluidifiant : CMC 3%

Nous présentons sur la figure Fig.7.19, les lignes de courant pour les différentes configurations de géométries : a) $\delta = 0.25$, b) $\delta = 0.5$ et c) $\delta = 0.75$. Ces résultats sont obtenus à partir du champ de vitesses moyen calculé sur 20 mesures de champs de vitesse instantanés, en régime établi.

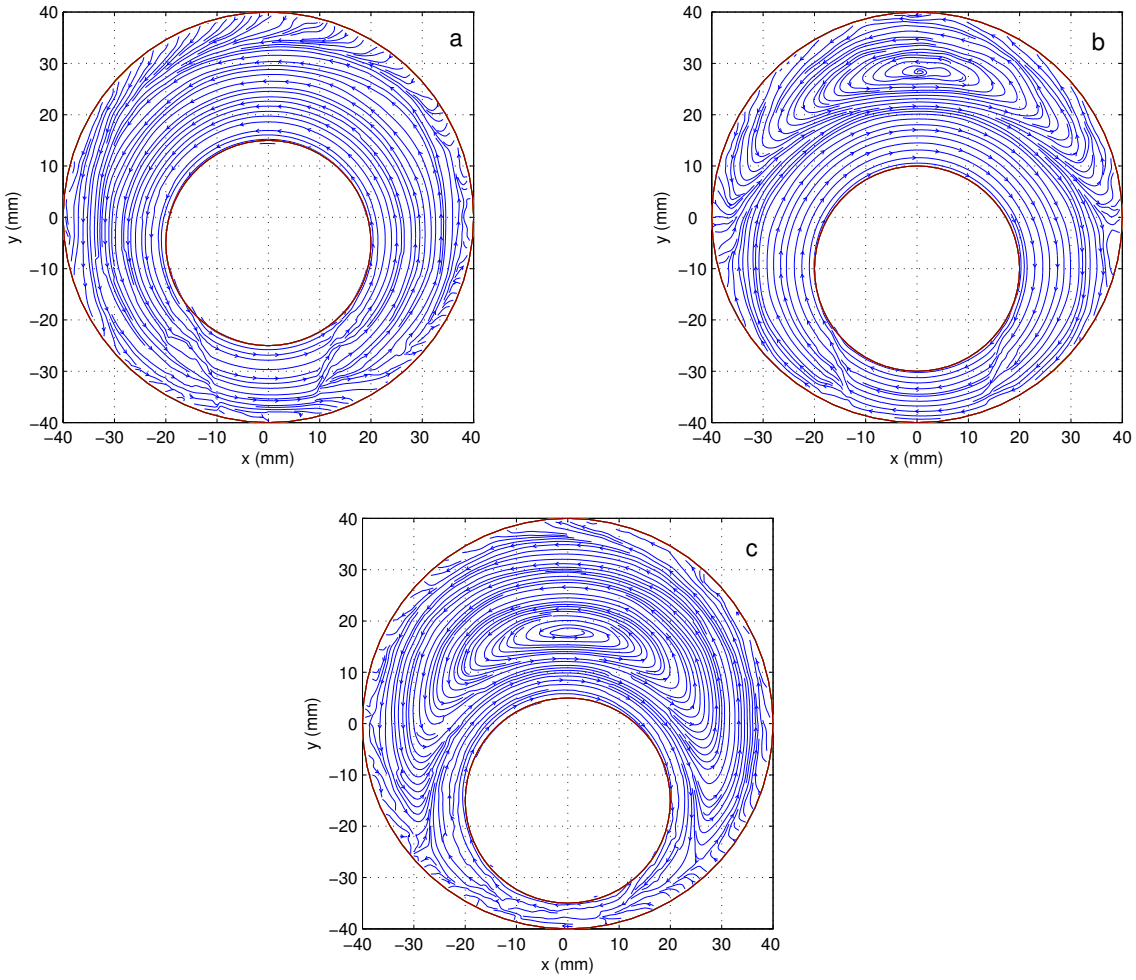


FIG. 7.19: *Mesures expériementales : Lignes de courant pour le CMC 3%, dans des géométries de trois excentricités : a) $\delta = 0.25$, b) $\delta = 0.5$ et c) $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$*

Les résultats sont similaires à ceux obtenus pour le fluide newtonien. Pour de faibles excentricités $\delta \prec 0.4$, les lignes de courant restent parallèles (Fig.7.19. a). Lorsque $\delta \succ 0.4$, nous observons un écoulement de retour et une zone de vorticité décrite par des lignes de courant fermées (Fig.7.19.b et Fig.7.19.c). La position de la zone de vorticité est centrée sur l'axe de symétrie $x = 0$ quelque soit $\delta \succ 0.4$. Plus l'excentricité augmente, et plus la position de cette zone de vorticité s'approche du cylindre intérieur. L'écoulement de retour occupe alors un plus grand espace dans l'entrefer

(Fig.7.19.c), et la zone de séparation entre l'écoulement proche du cylindre intérieur et l'écoulement de retour, change de forme. Le même comportement de l'écoulement a été observé pour différentes vitesses de rotation du cylindre intérieur Ω.

Nous avons également effectué des simulations numériques sur Fluent en utilisant les paramètres du modèle de Cross déterminés précédemment (Tab.7.1). Nous constatons que les lignes de courant décrivent le même comportement que celui observé expérimentalement (Fig.7.20). Dans la géométrie dont l'excentricité est égale à 0.75, nous avons comparé les profils de vitesse mesurés par la PIV et calculés par Fluent.

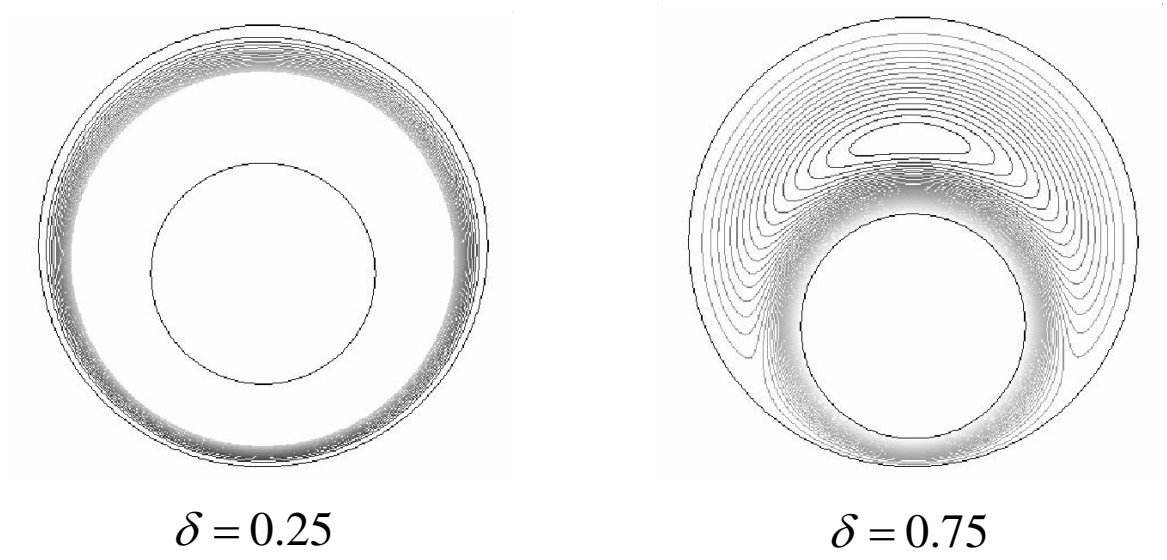


FIG. 7.20: *Simulations numériques : Lignes de courant pour le CMC 3%, dans des géométries où $\delta = 0.25$ et $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$*

La figure Fig.7.21 présente les profils de vitesse tangentielle v_θ sur le demi axe positif $[0, y^+[$ où $\theta = \pi/2$ (la vitesse radiale v_r est nulle), pour différentes vitesses de rotations Ω du cylindre intérieur. Les résultats montrent que les profils de vitesse mesurés et calculés par Fluent sont superposés, pour toutes les vitesses de rotation étudiées $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. Les profils décrivent une zone de vorticité $v = 0$ séparant deux écoulements : un dans le sens de la vitesse Ω près du cylindre intérieur et un écoulement de retour (dans le sens opposé) du coté du cylindre extérieur. La zone de vorticité se situe à la même position $r - R_i = 13.5mm$ pour toutes les vitesses Ω.

La figure Fig.7.22 présente les profils de vitesse tangentielle v_θ (sur **a**), et les profils de vitesse radiale v_r (sur **b**) sur le demi axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$, pour différentes vitesses de rotations Ω du cylindre intérieur. Les résultats montrent, encore une fois, que les profils de vitesse mesurés par la PIV et calculés par Fluent sont superposés, pour toutes les vitesses de rotation $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. Les profils décrivent la zone de séparation qui se situe à la même position $r - R_i = 9mm$

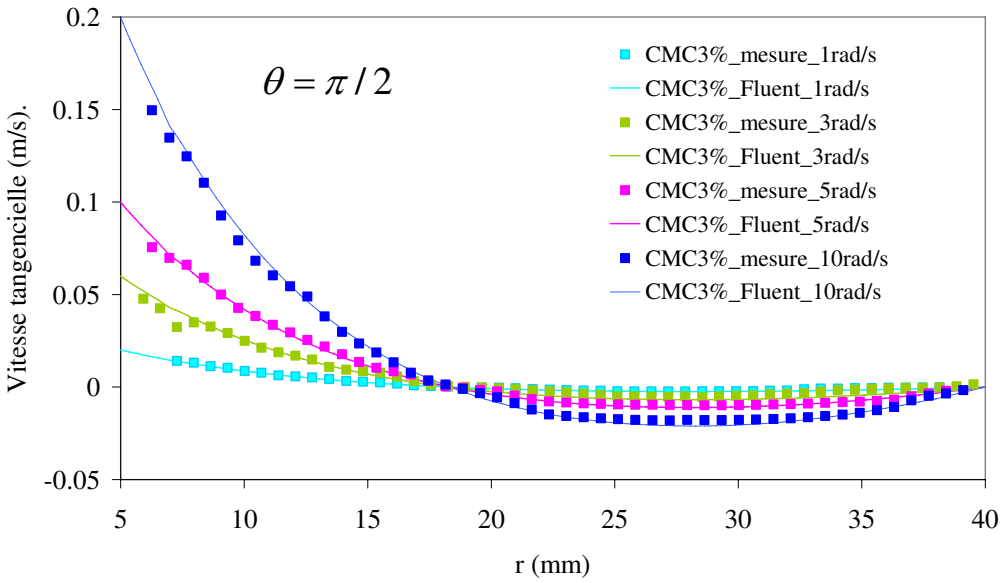


FIG. 7.21: *CMC 3% : profils de vitesse tangentielle mesurés par PIV et calculées par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demi axe positif $[0, y^+[$ où $\theta = \pi/2$, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s.*

sur le demi axe positif $]x^+, -15]$ (Fig.7.22.a). Notons que des erreurs de mesure peuvent apparaître pour les faibles vitesses près du cylindre extérieur (Fig.7.22), mais les résultats restent globalement très satisfaisants. Ces résultats montrent que le comportement du CMC 3% peut être décrit par le modèle de Cross.

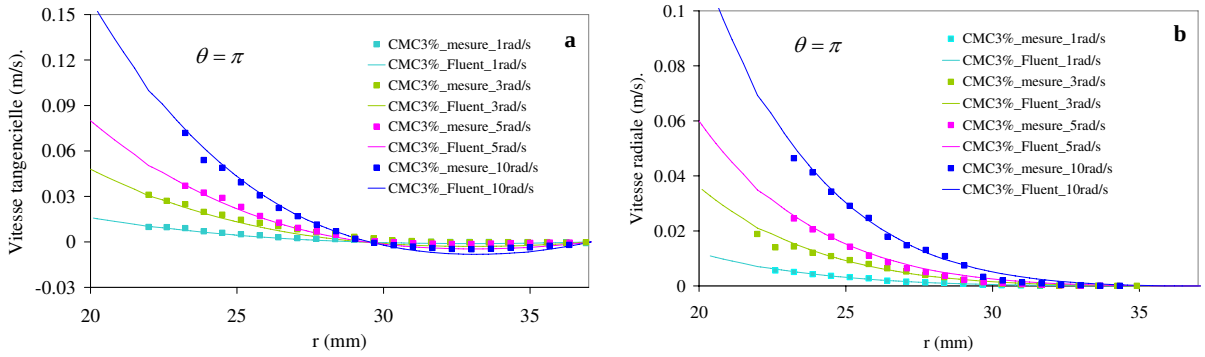


FIG. 7.22: *CMC 3% : profils de vitesse mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demi axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$: a) vitesse tangentielle. b) vitesse radiale, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s.*

La comparaison entre l'écoulement du CMC et du Emkarox® montre que les comportements

de ces deux fluides sont similaires :

- une zone de vorticté dès que $\delta \succ 0.4$. Le même résultat a été obtenu par Dris [114] pour une plus petite courbure $\epsilon = 0.13$ (et pour un fluide viscoélastique),
- la zone de vorticité se situe à la même position pour les deux fluides.
- les comportements des deux fluides sont correctement prédits par le calcul sur Fluent, en utilisant la viscosité constante pour le Emkarox®, et en utilisant la loi de Cross pour le CMC3%. Néanmoins, nous observons une légère suréstimation de la vitesse de recirculation dans le cas du CMC3% (Fig.7.22.a, Fig.7.21).

7.3.4 Xanthane 0.5%

Nous avons effectué des mesures dans la géométrie à cylindres excentrés avec $\delta = 0.75$, pour l'écoulement de la solution de Xanthane 0.5%. Nous n'avons pas observé de zone de vorticité dans la région où l'entrefer est grand. En effet, les vitesses dans cette région sont quasiment nulles et les lignes de courant ne sont pas distinguées. Les profils de vitesse tangentielle sur le demi axe positif où $\theta = \pi/2$ sont représentés sur la figure Fig.7.23.

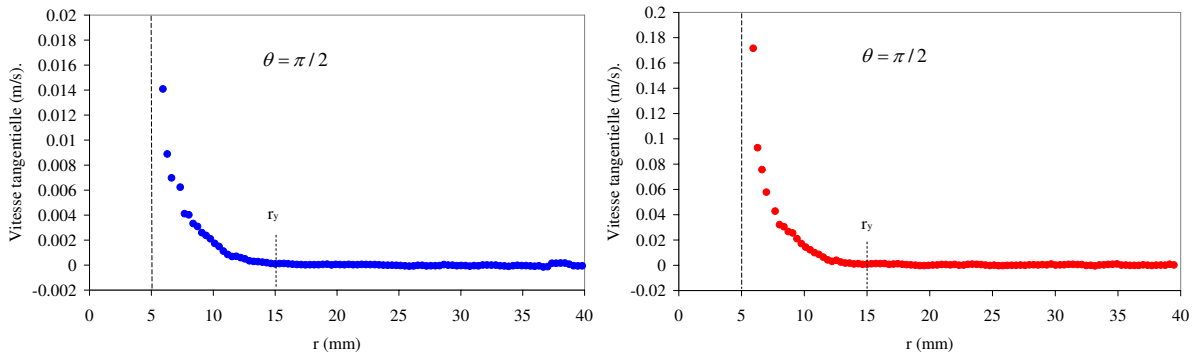


FIG. 7.23: *Xanthane 0.5% : profils de vitesse tangentielle mesurés par PIV dans la géométrie à cylindres ($\delta = 0.75$) sur le demi axe où $\theta = \pi/2$. A droite : $\Omega = 1$ rad/s. A gauche : $\Omega = 10 rad/s$*

Les résultats montrent un très fort gradient de vitesse près du cylindre intérieur tournant, avec des valeurs de vitesse quasi nulles pour des positions r supérieures à $r_y = 15mm$. Rappelons qu'un comportement similaire a déjà été observé dans la géométrie à cylindres centrés. Mieux, la comparaison de ce comportement avec celui de l'écoulement dans une géométrie centrées montre que le comportement du Xanthane est strictement identique dans les deux géométries : $\delta = 0$ et $\delta = 0.75$ (Fig.7.24). La vitesse tangentielle rapportée à la vitesse du cylindre intérieur v/V montre que les profils de vitesse dans les deux géométries sont superposés [12]. Même avec une grande

[12] Nous obtenons le même résultat pour $\Omega = 10 rad/s$

excentricité, nous n'observons pas de recirculation (à l'echelle de temps de nos mesures qui est de l'ordre de la minute). La très forte rhéofluidification du Xanthane induit une zone cylindrique de cisaillement localisée près du cylindre intérieur. L'observation d'une vidéo sur un interval de temps de 30 minutes a montré l'inexistence de la zone de recirculation pour cette solution de Xanthane.

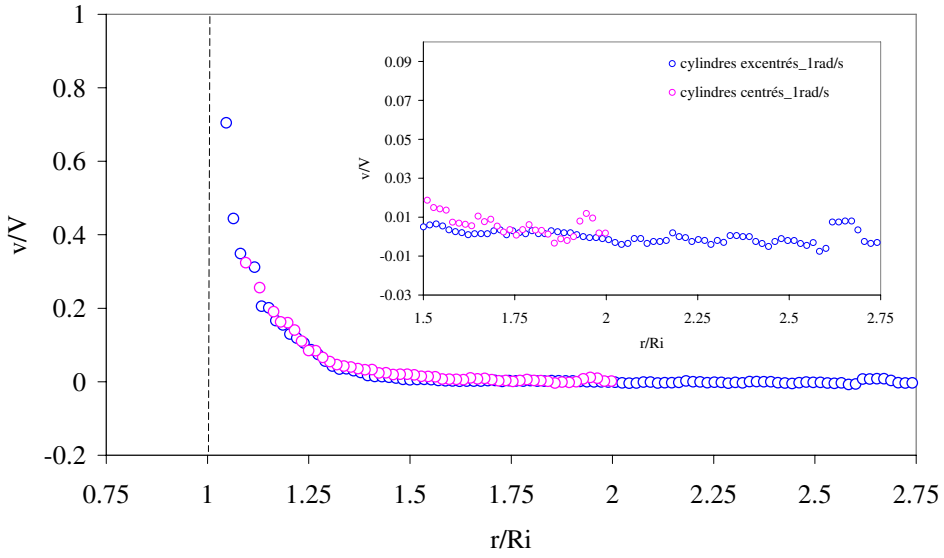


FIG. 7.24: *Xanthane 0.5% : profils de vitesses relatifs dans deux géométries à cylindres centrés $\delta = 0$ et excentrés $\delta = 0.75$ sur le demi axe où $\theta = \pi/2$ et $\Omega = 1rad/s$.*

Les simulations numériques utilisant le modèle de Cross à 4 paramètres montrent aussi une localisation du cisaillement près du cylindre intérieur (Fig.7.25). Nous avons comparé les profils de vitesse relatifs expérimentaux et numériques sur l'axe où $\theta = \pi/2$. Les profils de vitesse montrent que le comportement du Xanthane est identique dans les deux géométries et que Fluent décrit un comportement très proche de celui observé expérimentalement (Fig.7.26). Ce résultat s'explique par la très forte rhéofluidification qui induit une zone cylindrique de cisaillement localisée près du cylindre intérieur.

L'application d'une vitesse de rotation très élevée devrait néanmoins permettre d'observer une zone de recirculation. La limite du couple du rhéomètre MARS ne nous a cependant pas permis d'accéder à ce régime d'écoulement.

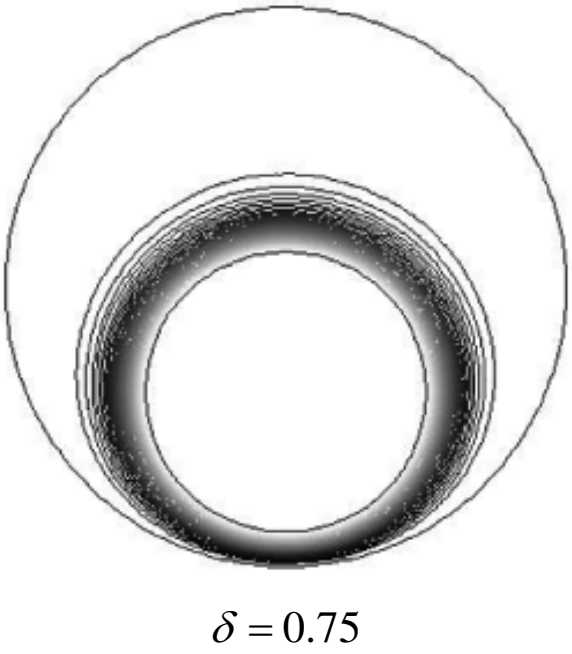


FIG. 7.25: *Simulations numériques (Cross à 4 paramètres) : Lignes de courant pour le Xanthane* 0.5% *dans le cas où* $\delta = 0.75$ *et* $\Omega = 10 rad/s$.

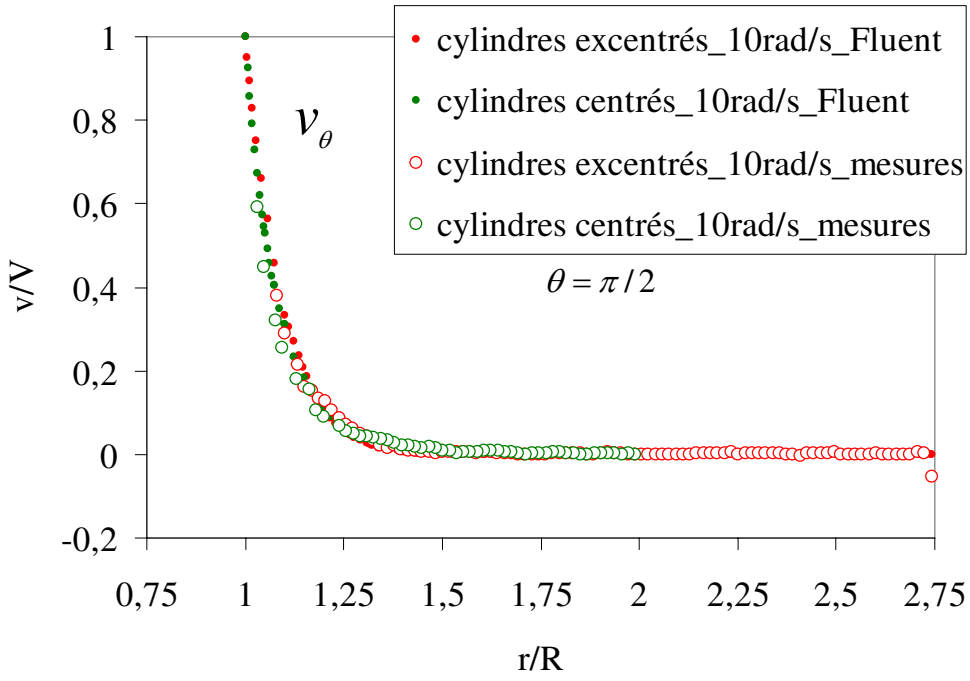


FIG. 7.26: *Comparaison entre mesures expérimentales et calculs numériques des profils de vitesse du Xanthane* 0.5% *dans la géométrie à cylindres excentrés dans le cas où* $\delta = 0.75$ *et* $\Omega = 10 rad/s$. *Profils sur les axes où* $\theta = \pi/2$

7.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les écoulements de stokes de trois fluides : newtonien (Emkarox®), peu rhéofluidifiant (CMC3%) et fluide fortement rhéofluidifiant (Xanthane0.5%) ; dans des géométries à cylindres centrés et excentrés. L'utilisation de la PIV a permis de décrire l'écoulement dans tout l'entrefer à travers les lignes de courants déterminées par le champ moyen de vitesses. Les résultats ont montrés qu'un écoulement secondaire apparaît (zone de vorticité), lorsque l'excentricité est supérieur à 0.4, dans le cas du Emkarox® (newtonien) et du CMC (faiblement rhéofluidifiant).

La mesure du champ de vitesses dans la géométrie à cylindres centrés ($\delta = 0$) a permis de déterminer la loi de comportement locale pour chaque matériau, grâce au champ de contrainte connu dans cette géométrie. La comparaison avec la loi de comportement déterminée en géométrie cône-plan montre que le comportement de chacun des trois fluides, dans une gamme de vitesse de cisaillement, appartenant à $[0.1 - 100]s^{-1}$, est indépendant du confinement.

De plus, des simulations numériques sur Fluent ont montré que les comportements du Emkarox® et du CMC peuvent être prédits en utilisant la viscosité constante pour le Emkarox® et en utilisant le modèle de Cross pour le CMC. L'étude dans la géométrie où $\delta = 0.75$ a confirmé ces résultats. Dans le cas du Xanthane, l'utilisation du modèle de Cross à 4 paramètres (UDF) permet de décrire un comportement similaire au comportement observé expérimentalement.

Enfin, l'analyse des résultats à montré que le Xanthane ne peut pas être décrit par une loi de puissance simple dans toute la gamme de vitesse de cisaillement $[0.7 - 60]s^{-1}$. Le comportement du Xanthane est identique dans les géométries où $\delta = 0$ et $\delta = 0.75$ (Fig.7.24, Fig.7.26). La très forte rhéofluidification du Xanthane induit une zone cylindrique de cisaillement localisée près du cylindre intérieur, limitant ainsi l'effet de l'excentricité sur l'écoulement.

Conclusion et Perspectives

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont permis d'étudier les différents comportements de fluides structurés en régime d'écoulement stationnaire et instationnaire. En régime stationnaire, nous avons relié le comportement macroscopique de plusieurs solutions de polymères à une description structurelle. En régime d'écoulement instationnaire nous avons déterminé les propriétés viscoélastiques non linéaires sous cisaillement. A plus grande échelle, nous avons mis en œuvre une méthode de vélocimétrie par imagerie de particules (PIV) appliquée à l'écoulement entre deux cylindres coaxiaux (Couette) centrés et excentrés. Ce qui a permis de mesurer le champs de vitesses stationnaires de différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant et fortement rhéofluidifiant. Ce travail a été complété par des investigations de simulations numériques sur Fluent.

Dans la première partie de cette thèse, nous avons donné une interprétation possible de la structure de différentes solutions aqueuses de polymère, sous écoulement stationnaire. Pour cela, nous avons proposé une approche dimensionnelle simple en supposant que les solutions se comportent, chacune, comme un milieu dispersé effectif. Cette étude, à partir du comportement rhéofluidifiant des solutions étudiées et par le biais du modèle de Quemada, a permis d'accéder à certains paramètres tel que la viscosité à fort cisaillement η_∞ et la contrainte caractéristique σ_c liée à l'énergie potentielle d'interaction effective U. L'interprétation de cette modélisation nous a permis de déterminer des paramètres physiques tel que le volume exclu et la taille effective a. A partir de ces paramètres nous avons prédit une valeur de l'élasticité, valeur en excellent accord avec les mesures. Cette validation permet de dire que le modèle de Quemada est une bonne approximation à la configuration et au comportement réel de ces polymères sous fort cisaillement.

Par ailleurs, nous avons réalisé des mesures de biréfringence sous écoulement pour différentes solutions de Xanthane montrant leur caractère anisotrope sous cisaillement. Nous avons montré que la loi tensio-optique est valide c.à.d. que les champs orientationnels des objets constituant le matériau ne dépendent que de la contrainte appliquée.

Dans un second temps, nous avons réalisé sous écoulement instationnaire, des expériences de

fluage et d'oscillation et nous avons montré que, en rhéométrie contrôlée en couple, les expériences d'oscillation mènent à l'apparition d'une fréquence de résonance. Son évaluation est accessible à travers l'expérience de fluage et l'utilisation d'un modèle viscoélastique simple de Maxwell-Jeffrey. Sa valeur est située entre 1 et $100Hz$ pour les gels faibles dont l'élasticité est inférieure à $10MPa$. Ces résultats ont montré que les expériences de balayage en fréquence (oscillations) à amplitude de contrainte appliquée constante, correspondent en fait à un balayage simultané en fréquence et en contrainte subie par le matériau. Ainsi l'analyse de l'effet d'inertie sur divers échantillons montre les limitations fondamentales dans la caractérisation des gels faibles en utilisant un rhéomètre contrôlé en couple (contrainte), notamment dans les expériences d'oscillations forcées à hautes fréquences par rapport à la fréquence de couplage.

Par la suite, nous avons mis en œuvre une méthode de mesure complète de la viscoélasticité sous écoulement en utilisant des expériences de fluage et le couplage entre l'inertie de l'appareil et la viscoélasticité du matériau. Le premier résultat de cette caractérisation est que l'élasticité et la dissipation élastique des différents matériaux à seuil étudiés restent presque constantes même pour des contraintes deux fois plus grandes que la contrainte seuil. Le second résultat est que la méthode développée permet de déterminer une contrainte seuil raisonnable tout en montrant clairement que cette notion n'est pas absolue mais dépend de l'outil de mesure. Un autre atout de cette méthode est que la détermination viscoélastique est presque instantanée, elle s'effectue sur quelques oscillations, à l'échelle typiquement de la seconde. Cette méthode très simple permet d'observer directement le comportement temporel de ces matériaux sous cisaillement, en comparant les deux viscosités mesurées : aux temps courts et au temps longs. Ceci a permis de discriminer clairement les comportements : thixotrope, viscoélastique retardé, ou encore le comportement inhomogène (fracturation) du matériau. Ainsi, cette méthode apparait comme un outil très efficace pour déterminer la limite d'élasticité des fluides à seuil et pour étudier la transition solide-liquide.

Dans la seconde partie de cette thèse, nous avons mis en place un dispositif expérimental qui permet d'étudier des écoulements entre deux cylindres à grand entrefer (centrés et excentrés), en utilisant la technique de la PIV. L'atout majeur de ce dispositif réside dans l'accès aux informations locales (champs de vitesse, visualisation) de l'écoulement dans tout l'entrefer. Des mesures avec un fluide newtonien ont permis de valider le dispositif expérimental et assurer sa fiabilité.

Nous avons étudié les écoulements de trois fluides : newtonien (Emkarox®), peu rhéofluidifiant (CMC 3%) et un fluide fortement rhéofluidifiant (Xanthane 0.5%) ; dans des géométries à cylindres centrés et excentrés. Les résultats ont montrés qu'un écoulement secondaire apparaît (zone de

vorticité), lorsque l'excentricité est supérieur à 0.4, dans le cas du Emkarox® (newtonien) et du CMC (viscoélastique et faiblement rhéofluidifiant). Cet écoulement est décrit par une recirculation qui n'apparaît pas dans l'écoulement du fluide très rhéofluidifiant.

La mesure du champ de vitesse dans la géométrie à cylindres centrés ($\delta = 0$) a permis de déterminer la loi de comportement locale pour chaque matériau, grâce au champ de contrainte connu dans cette géométrie. La comparaison avec la loi de comportement déterminée en géométrie cône-plan montre que le comportement de chacun des trois fluides, dans une gamme de vitesses de cisaillement étudiée ($[0.1 - 100]s^{-1}$), est indépendant du confinement (rhéométrie avec un petit entrefer et mesures locale avec le grand entrefer), ceci montre bien que le matériau est homogène dans les deux entrefer et qu'il ne glisse pas aux parois. La mesure du champs de vitesse dans la géométrie à forte excentricité ($\delta = 0.75$) vient confirmer ces résultats. De plus, des simulations numériques sur Fluent ont montré que les comportements du fluide newtonien et celui du fluide peu rhéofluidifiant peuvent être prédits en utilisant la viscosité constante pour le premier et en utilisant le modèle de Cross pour le second. Dans le cas du fluide très rhéofluidifiant, le calcul de Fluent en utilisant le modèle de Cross à 4 paramètres permet de décrire un comportement très proche du comportement réel dans les deux géométries : centrée et excentrée. Enfin, nous avons montré que la présence d'une rhéofluidification importante a pour conséquence la localisation d'une zone de fluide cisaillé près du cylindre intérieur, limitant fortement l'effet de l'excentricité sur l'écoulement.

Ce travail pourrait être poursuivi sur plusieurs axes. Tout d'abord la modélisation structurales pourrait être appliquée à des matériaux se comportant comme des fluides à seuil lorsque la concentration est suffisante, comme le Carbopol. D'autre part, comme il est apparemment possible d'éliminer les bactéries du Xanthane, il serait peut être possible de mesurer directement le paramètre de structure par la méthode rhéoptique.

Pour ce qui est des écoulements en géométrie de Couette centré et excentré, notre travail a montré qu'il n'était pas trivial de faire des mesures pour les matériaux très rhéofluidifiants. Malgré ces difficultés, il serait important de poursuivre ce travail pour des fluides à seuil communs afin de mieux comprendre leur comportement sous écoulement. Il serait également intéressant d'étudier l'écoulement élongationnel dans la géométrie à forte excentricité (en utilisant le polyacrylamide par exemple). Enfin, l'établissement de l'écoulement de ces matériaux est également une piste intéressante, en particulier pour le Xanthane, qui permettrait une mesure simultanée de la contrainte et du cisaillement.

Annexes

Annexe A

Etalonnage du vane moyen

A.1 Problématique

On veut déterminer les paramètres rhéologiques d'un matériau donné à l'aide du dispositif « Vane » pour cela il faut affranchir des paramètres qui dépendent de la géométrie Vane elle même, à savoir son rayon effectif R_1 et sa hauteur effective H. Ces paramètres sont dits « effectifs » car ils correspondent respectivement au rayon et à la hauteur d'un cylindre effectif supposé se comportant de la même manière que le vane en question. On considère la géométrie vane placée dans un pot cylindrique comme une géométrie de deux cylindres coaxiaux : le cylindre extérieur est fixe et on cherche à montrer si l'on peut vraiment considérer le mouvement intérieur comme un mouvement cylindrique. Pour cela on effectuera des mesures avec le cone-plan.

Le *Vane moyen* est un cylindre à base conique, il contient six pales réparties de manière équidistante sur le contour du cylindre (Fig.A.1). Le diamètre de pale en pale est $2R_2 = 22mm$, et la hauteur $H = 50mm$.

A.2 Mesures avec des fluides newtoniens :

Nous avons utilisé les relations moyennées des facteurs géométriques données par :

$$F_\sigma = \frac{R_2^2 + R_1^2}{4\pi h R_2^2 R_1^2} = \frac{\sigma}{\Gamma} \tag{A.1}$$

$$F_\gamma = \frac{R_2^2 + R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} = \frac{\dot{\gamma}}{\Omega} \tag{A.2}$$

où :

σ : la contrainte appliquée.

Γ :le couple appliqué.

σ : la vitesse de cisaillement.

R_1 : le rayon effectif du cylindre intérieur.

R_2 : le rayon du cylindre extérieur.

h : la hauteur effective immergée (Fig.A.1).

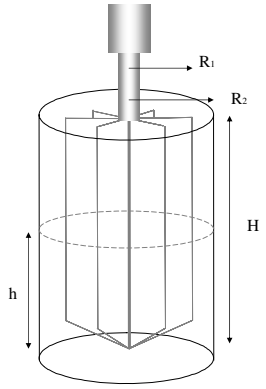


FIG. A.1: *Etalonnage de la géométrie Vane.*

La viscosité dynamique est exprimée par : $\eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} = \frac{\Gamma}{\Omega}\frac{F_\sigma}{F_{\dot{\gamma}}}$, ceci implique :

$$\frac{\Gamma}{\Omega} = \eta.\frac{4\pi R_1^2 R_2^2}{R_2^2 - R_1^2}.h \tag{A.3}$$

A.2.1 Mesure du frottement du palier à air

Les valeurs du couple données par le rhéomètre sont des valeurs brutes c.à.d la valeur du couple réel plus le couple dû au palier à air ; de ce fait un étalonnage du palier à air est nécessaire. Les résultats sont représentés sur la figure Fig.A.2

A la température de 21°, on mesure le frottement du palier à air $\left(\frac{\Gamma}{\Omega}\right)_{air} = C$ qu'on soustrait, par la suite, aux valeurs brutes obtenues à chaque manipulation et dans les mêmes conditions. Le relation Eq.A.4 devient :

$$\left(\frac{\Gamma}{\Omega}\right)_{rel} = \left(\frac{\Gamma}{\Omega}\right)_{brut} - C = \eta A h \tag{A.4}$$

avec :$A = \frac{4\pi R_1^2 R_2^2}{R_2^2 - R_1^2}$

On remarque que cette valeur est constante et elle est égale à chaque fois à la valeur estimée par le rhéomètre à partir de « calibrate miscellaneous » faite avant chaque mesure. Donc on peut se fier à la correction de friction du palier à air du rhéomètre.

A.2.2 Mesure des paramètres géométriques (Facteurs géométriques)

On effectuera le calibrage (ou l'étalonnage) du vane en faisant des mesures rhéométriques avec des fluides newtoniens. On utilisera l'*huile de silicone* à $1000Cst$ et l'*huile Dow Corning* à $10000Cst$.

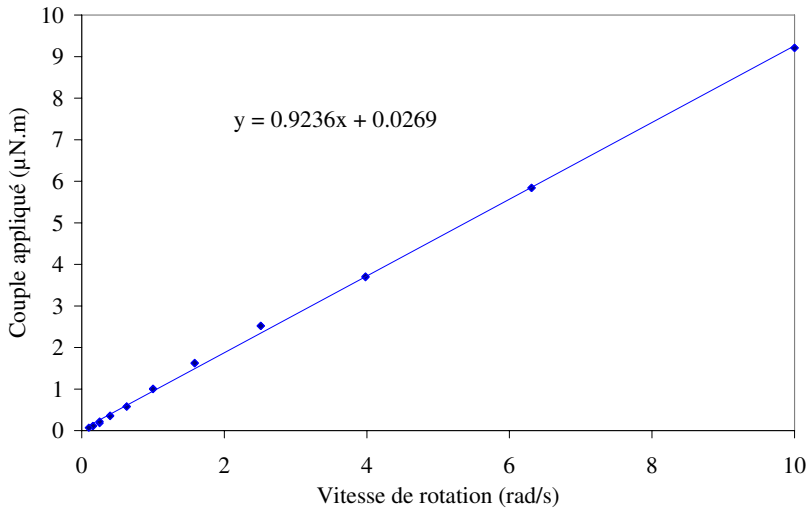


FIG. A.2: *Géométrie Vane*

En mode opératoire, le Vane est complètement immergé dans le matériau de telle façon que les extrémités supérieures des pales effleurent la surface du matériau, on remplace h dans l'équation Eq.A.4 par $h = H - y$, (y étant la hauteur non immergée). Ce qui permet d'obtenir :

$$\frac{\left[\left(\frac{\Gamma}{\Omega}\right)_{brut} - C\right]}{\eta} = -A.\eta + B \tag{A.5}$$

où : $B = A.H$.

En identifiant avec les courbes obtenues, on peut calculer R_1 et H :

$$A = \frac{4\pi R_1^2 R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Rightarrow R_1 = \sqrt{\frac{AR_2^2}{A + 4\pi R_2^2}} \tag{A.6}$$

$$B = A.H \Rightarrow H = \frac{B}{A} \tag{A.7}$$

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure Fig.A.3.

Les courbes obtenues sont des droites de pentes négatives, le calcul correspondant donnes les valeurs regroupées dans le tableau suivant (Tab.A.1) :

	B	A	$R_2(mm)$	$R_1(mm)$	$H(mm)$
Silicone 1	76.83	1.71	24	10.50	44.81
Silicone 2	78.95	1.76	24	10.62	44.71
Dow corning	72.05	1.61	24	10.24	44.67

TAB. A.1: *Paramètres géométriques de l'étalonnage du Vane.*

On prendra les valeurs moyennes de $R_1 = 10.46mm$ et de $H = 44.73mm$ des trois manipulations.

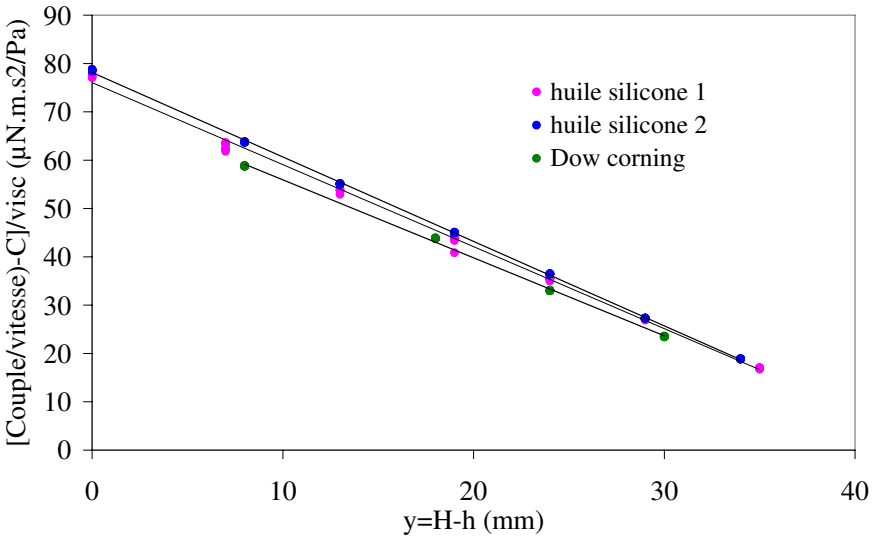


FIG. A.3: *Détermination des paramètres géométriques du Vane moyen*

A.3 Mesures avec le Carbopol 0.1% : vérification des paramètres

On introduit les paramètres géométriques obtenus dans le programme, et on fait des mesures en rampes montée et descente contrôlées en couple avec le Carbopol 0.1% en utilisant la géométrie vane et cone. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure Fig.A.4.

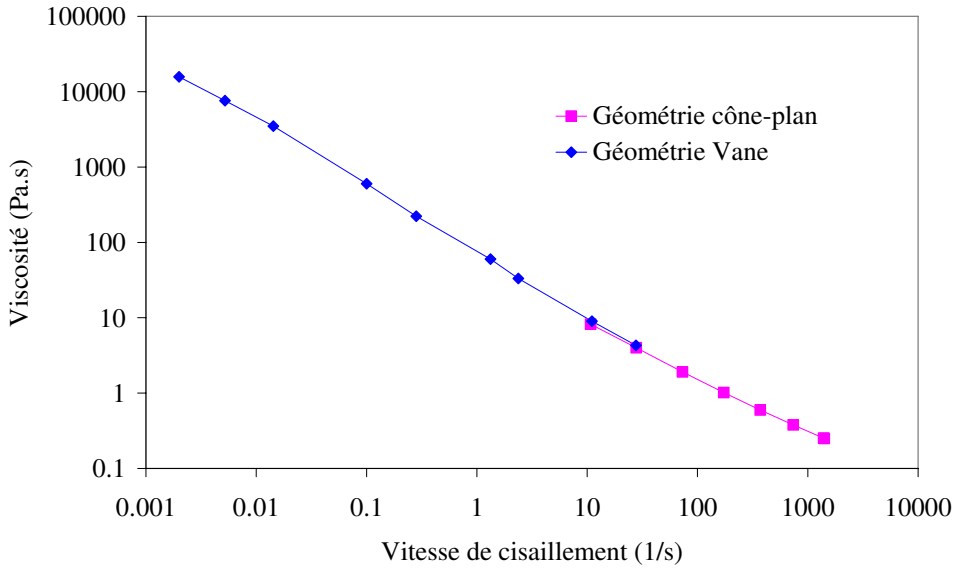


FIG. A.4: *Rhéogrammes de mesure avec la géométrie cône-plan et la géométrie vane*

Les résultats montrent une bonne concordance des mesures effectuées avec la géométrie cône-

plan et celle avec le Vane étalonné. Ceci se traduit par la bonne méthodologie utilisée ainsi que la fiabilité des paramètres géométriques déterminés.

Annexe B

Résultats de la caractérisation viscoélastique

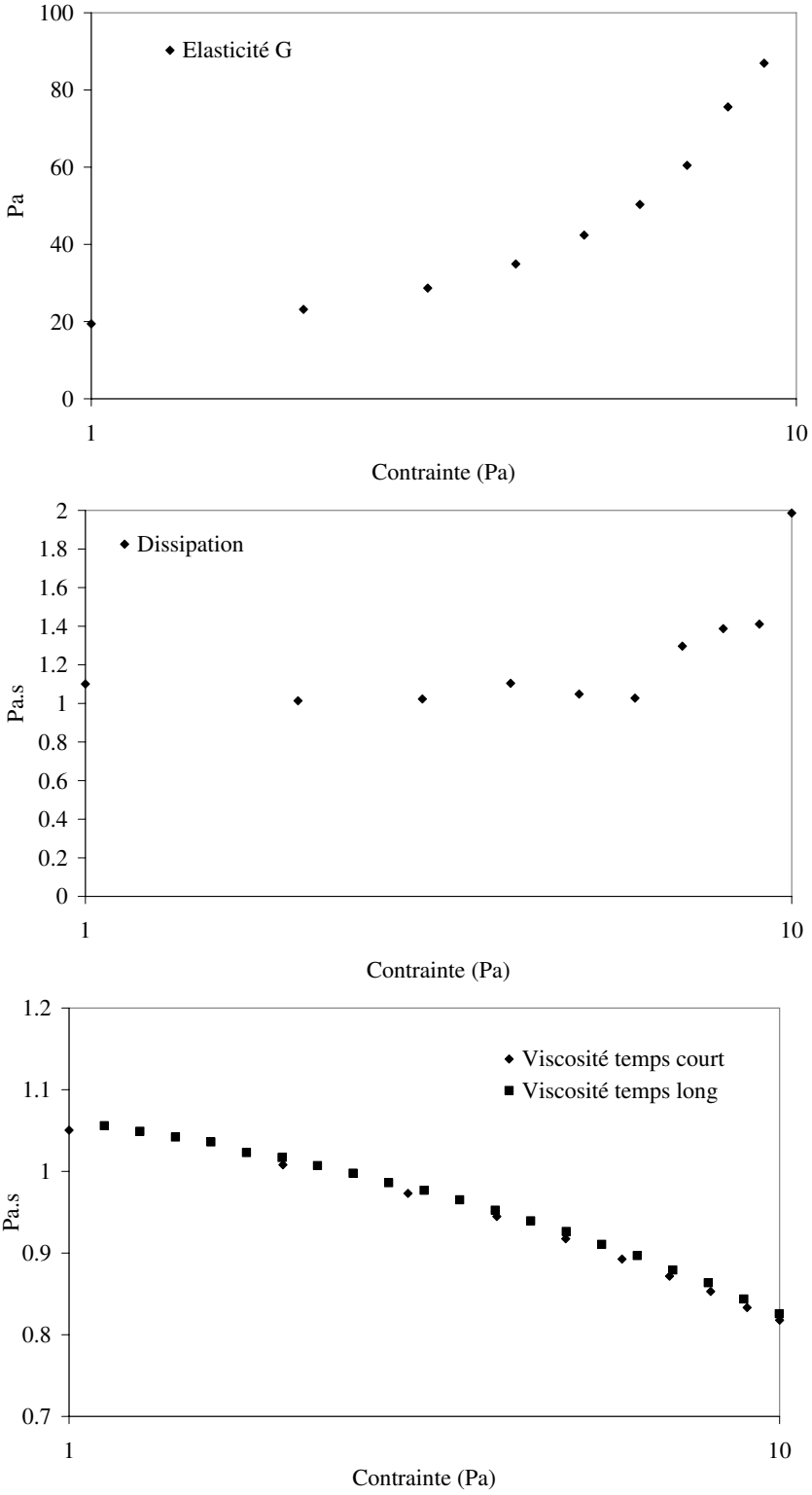


FIG. B.1: *Paramètres viscoélastiques sous écoulement du CMC 3%.*

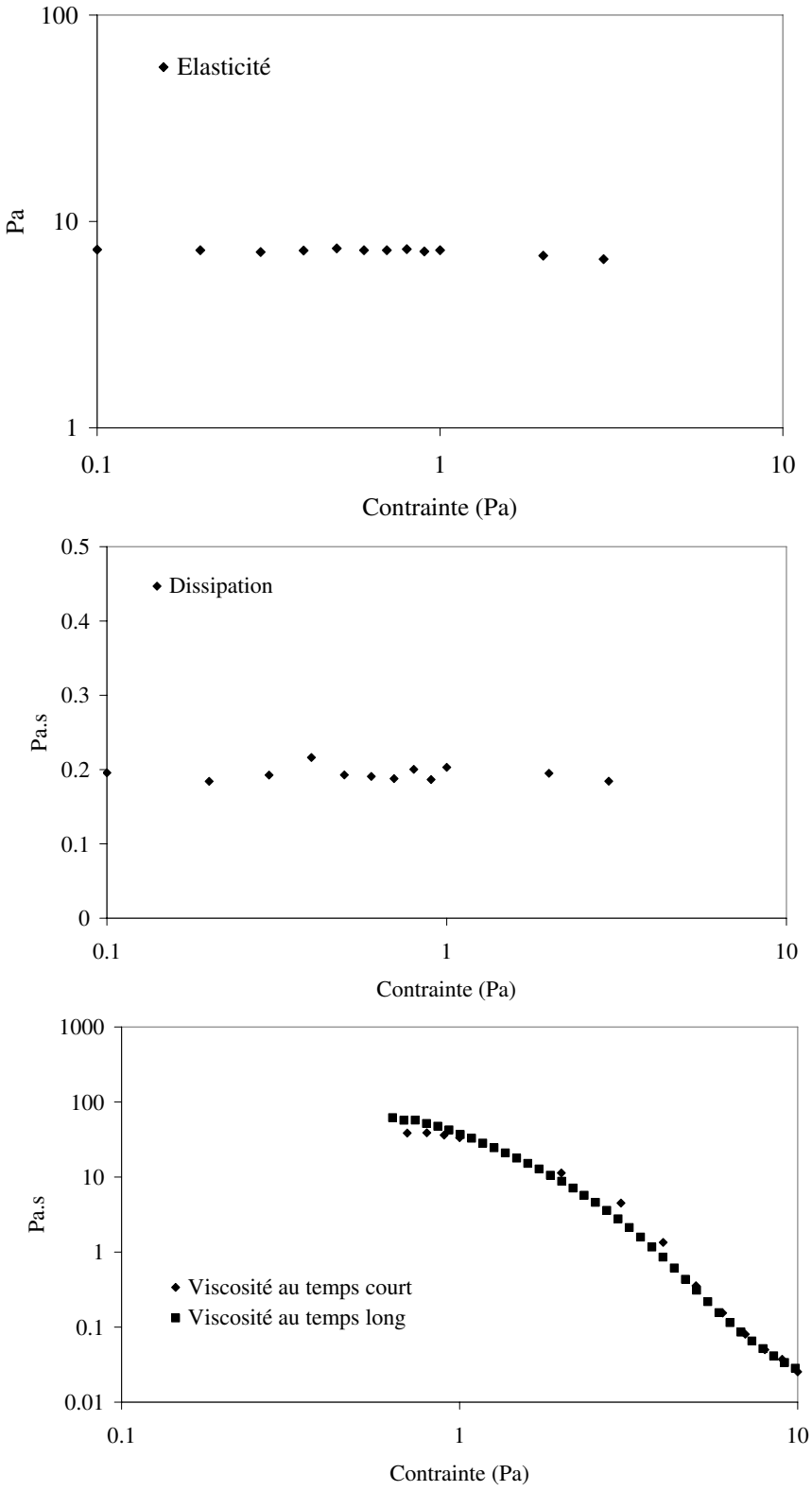


FIG. B.2: *Paramètres viscoélastiques sous écoulement du Xanthane 0.5%.*

Annexe C

Simulations numériques sur Fluent

Afin de compléter nos études expérimentales sur l'écoulement bidimensionnel entre cylindres centrés (Couette) et excentrés, nous avons réalisés des simulations à l'aide du code de simulation à volumes finis : « Fluent » .

Succinctement, le code Fluent résous les équations de conservation de quantité de mouvement et de masse. Nous avons utilisé la version *FLUENT* 6.3, en mode stationnaire (*steady*) : l'algorithmes SIMPLE pour la résolution itérative [123], et *First Order Up wind* et *Quick* pour le système de descritisation. Tous les calculs sont effectués avec les paramètres par défaut du code Fluent, sauf le critère de convergence (résidu égal à 10^{-6}).

C.1 Technique de résolution

Pour résoudre les équations de conservation de la masse et de quantité de mouvement, Fluent utilise :

- la division du domaine en volume de contrôle utilisant une grille définit sur « GAMBIT » pour le maillage.
- l'intégration des équations gouvernant l'écoulement sur chacun des volumes de contrôles afin de construire les équations algébriques (différence finies) pour les inconnues discrètes.
- la résolution des équations discrètes.

La résolution des équations aux différences finies nécessite :

- le calcul de la pression agissant sur la surface des volumes.
- la détermination des flux à travers les surfaces.
- l'interpolation des valeurs obtenues sur les surfaces pour en déduire la valeur des inconnues au centre du volume.

C.2 Procédure de résolution et maillage

Dans notre cas, les volumes de contrôle sont des surfaces puisqu'il s'agit de simuler des écoulements bidimensionnels. Les maillages de deux configurations de géométrie (en 2D) utilisées sont représentées sur la figure Fig.C.1 et la figure Fig.C.2.

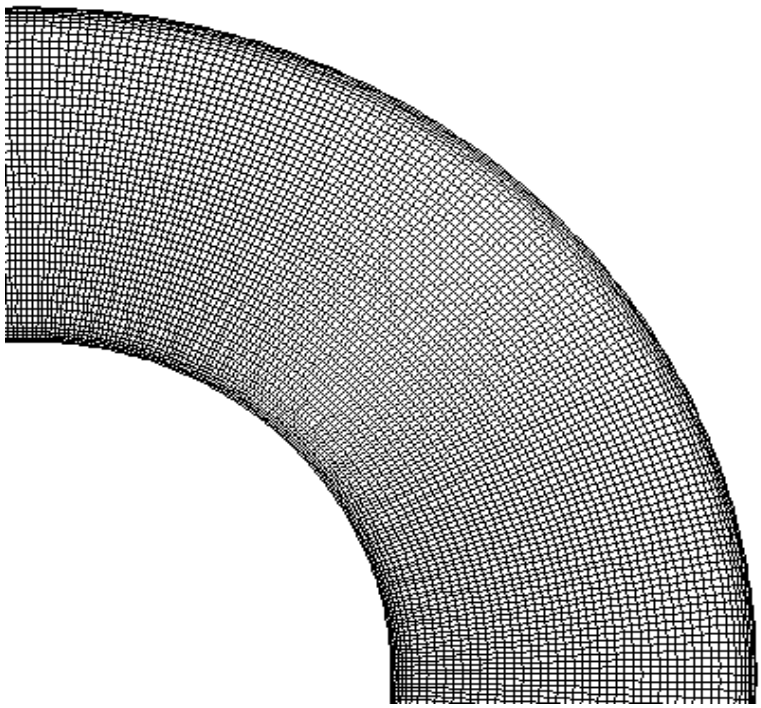


FIG. C.1: *Maillage de la géométrie de Couette.* $\delta = 0$

Les différentes géométries, chacune définie par le paramètre de l'éxcentricité $\delta = d/e$, sont maillées de la façon suivante [1] :

- $N = 48000$ cellules quadrilatères pour le couette centré (Fig.C.1).
- $N = 48000$ jusqu'à $N = 53000$ cellules mixtes pour la géométrie la plus excentrée ($d = 15mm$) : quadrilatères et triangulaires, du fait de sont asymétrie de rotation (Fig.C.2).

Pour assurer la précision du calcul, chaque géométrie est maillée finement au niveau des parois avec des cellules quadrilatères (largeur $f = 2,4.10^{-3}mm$ près des cylindres). Le nombre et les surfaces des plus petites et des plus grandes mailles sont données dans le tableau Tab.C.1.

Le contrôle des résultats de calcul se fait à partir de critères de convergence imposés. Le champ de vitesse et celui de la pression sont reliés en vérifiant dans chacune des cellules les équations

[1] Nous rappelons que d est la distance du centre du cylindre intérieur par rapport à celui du cylindre extérieur, et e est le rayon moyen.

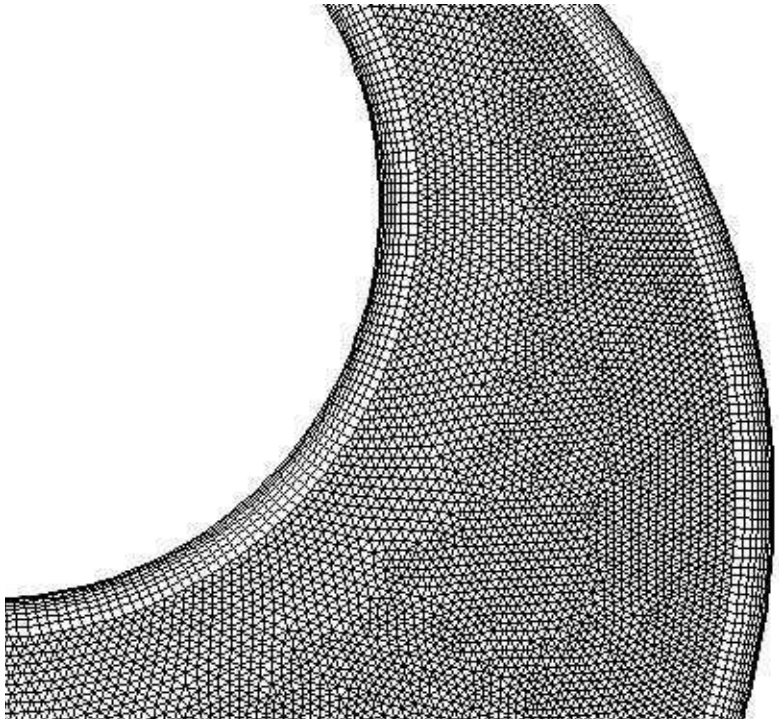


FIG. C.2: *Maillage de la géométrie des cylindres excentrés avec* $\delta = 0.75$.

δ	*nombre* : N	surface minimale (m^2)	surface maximale (m^2)
0	48000	$2,48.10^{-8}$	$23,78.10^{-8}$
0.75	53000	$4,6.10^{-8}$	$28,70.10^{-8}$

TAB. C.1: *Caractéristiques du Maillage.*

linéarisées de quantité de mouvement et de continuité.

C.3 Simulation numérique d'un écoulement newtonien dans une géométrie de Couette

Nous avons commencé, tout naturellement, par contrôler les résultats de simulation d'un fluide newtonien. Nous avons représenté sur la figure Fig.C.3, le profil de vitesse calculé par Fluent pour un fluide newtonien de viscosité dynamique η constante et dans une géométrie de Couette pour $\Omega = 10 rad/s$. Les points de mesure se superposent parfaitement à la solution analytique. Ceci montre que le maillage (bidimensionnel) de la géométrie est adéquat.

Dans notre travail de thèse, nous avons utilisé ce logiciel (Fluent) pour prédire les écoulements

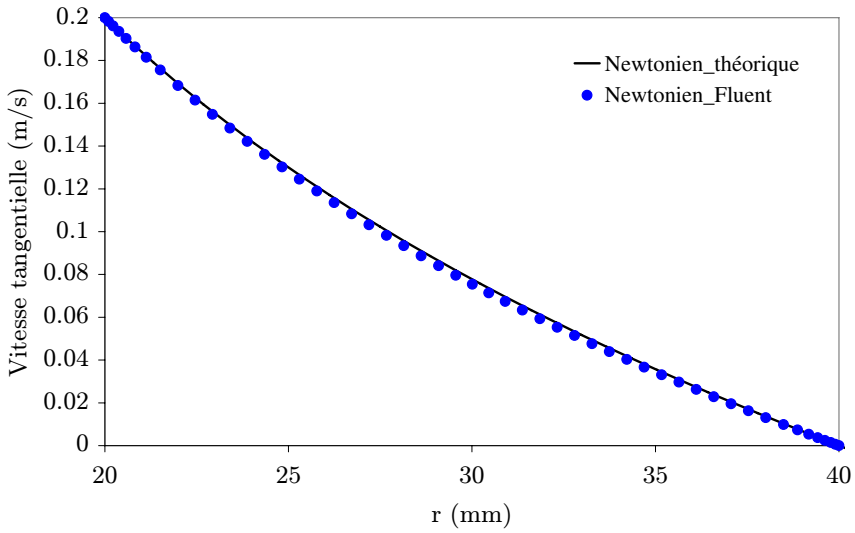


FIG. C.3: *Profils de vitesse tangentielle v_θ d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien dans une géométrie de Couette pour $\Omega = 10 rad/s$: Comparaison des profils exacte et celui calculé par Fluent.*

de différents fluides, en utilisant les lois de Cross et de Herschel-Bulkley. Nous avons pu alors comparer les champs de vitesses obtenus numériquement avec ceux obtenus par la mesure (PIV), pour des écoulements où le nombre de Raynolds est faible (écoulement de stokes).

Table des figures

1.1 Cisaillement simple entre deux plan parallèles 13
1.2 Différents types de comportement rhéologiques réels [1] 14
1.3 Exemple de courbe d'écoulement obtenue pour une solution de polymère de contrainte seuil σ_y 17
1.4 Géométrie cône-plan 20
1.5 Géométrie à cylindres coaxiaux 21
1.6 Géométrie Vane 22
1.7 Structure moléculaire du Emkarox® : les deux monomères constituant la macromolécule de Emkarox 25
1.8 À gauche : structure de la molécule de cellulose. À droite : structure moléculaire d'un monomère de corboxyméthylcellulose [30] 26
1.9 Macromolécule de corboxyméthylcellulose 26
1.10 Structure chimique de la macromolécule du xanthane (extraite de http ://biochim-agro.univ-lille1.fr/polysaccharides/res/xanthane1.png) 28
1.11 Structure de la macromolécule du polyacrylamide (http : //fr.wikipedia.org/wiki/Image : Polyacrylamide-polymerisation.png) 29
1.12 Structure moléculaire du Carbopol 940 29
1.13 Structure microgel schématisée du Carbopol 30
1.14 Courbe d'hystérésis typique obtenue par des mesures sur le rhéomètre à contrainte imposée $AR2000$ avec la géométrie Vane (xanthane 2%) 32
1.15 Comportement d'un fluide viscoélastique en réponse à un échelon de contrainte de petite (rouge) et grande (bleu) amplitudes 33

2.1 Représentation schématique de la concentration critique de recouvrement ($c*$) séparant les domaines dilués et semi-dilués [41] 39
2.2 Représentation schématique de la relation viscosité-Structure à faibles ($Pe \to 0$) et à fortes contraintes de cisaillement ($Pe \to \infty$) dans une dispersion de sphères dures 42

2.3 Courbes maîtresses décrivant le comportement de la viscosité relative en fonction du nombre de Peclet 44
2.4 Schémas de la procédure appliquée pour des mesures de la viscosité stationnaire sous cisaillement 47
2.5 Courbes d'écoulement montée-descente du Carboxyméthylcellulose (CMC) à différentes concentrations en masse : 1, 2, 4, 5 et 6% 48
2.6 Courbes d'écoulement montée-descente du Polyacrylamide à différentes concentrations en masse : 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 0.7 et 1% 49
2.7 Courbes d'écoulement montée-descente du Xanthane à différentes concentrations en masse : 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 0.7, 1, 1.5 et 2% 49
2.8 Comportement de la viscosité à fortes contraintes de cisaillement η_∞ avec la concentration, le modèle est obtenu à partir des équations Eq.2.22. A gauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane. 51
2.9 Comportement de la viscosité à faibles contraintes de cisaillement η_∞ avec la concentration, le modèle est obtenu à partir des équations Eq.2.23. A gauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane. 52
2.10 Evolution de la contrainte critique σ_c avec la concentration. A guauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane 52
2.11 Schéma représentatif d'une paire de particules sphériques séparées d'une distance D 53
2.12 Comportement de la distance inter-particulaire D avec la concentration 54
2.13 Comparaison du comportement de la viscosité sous cisaillement du Xanthane 0.2% et du Polyacrylamide 0.2%, pour une même concentration 55
2.14 Comportement de l'énergie moyenne d'interaction entre deux particules avec la distance inter-particulaire D. A guauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane . 55
2.15 Comparaison de l'élasticité G'_∞ obtenue par la modélisation et de l'élasticité G obtenue par des mesures de fluage. A gauche : le Polyacrylamide. A droite : le Xanthane 56
2.16 Propagation d'une onde électromagnétique polarisée 58
2.17 Polarisation d'une onde électromagnétique 59
2.18 Anisotopie optique dans un milieu biréfringent 60
2.19 Evolution de l'état de polarisation en fonction de la distance parcourue dans un milieu biréfringent de solution colloïdale (propagation de haut en bas). La polarisation est linéaire en entrée [50]. 61
2.20 Rhéologie de la solution de xanthane 1% 61
2.21 Dispositif expérimental pour la mesure de la biréfringence des solutions de Xanthane 62

2.22 Biréfringence de la solution de Xanthane 1% pour différents cisaillements. De gauche à droite : $0.01s^{-1}$, $0.05s^{-1}$, $0.1s^{-1}$, $0.5s^{-1}$, $5s^{-1}$, $10s^{-1}$, $100s^{-1}$ et $900s^{-1}$ 63
2.23 Décroissance et oscillations d'intensité de la solution sous cisaillement. A gauche : Xanthane 0.5% ($0.005s^{-1}$, $1s^{-1}$, $100s^{-1}$ et $500s^{-1}$). A droite : Xanthane 2% ($0.01s^{-1}$, $1s^{-1}$, $100s^{-1}$ et $500s^{-1}$) 64
2.24 Biréfringence des solution de Xanthane 0.5%, 1% et 2% en fonction de la contrainte appliquée. Loi tensio-optique 66

3.1 Schéma analogique du modèle de Maxwell-Jeffrey 72
3.2 Rhéomètre AR2000 et géométrie de mesure Cône-plan 75
3.3 Procédure de l'expérience de fluage 76
3.4 Procédure de l'expérience d'oscillation autour de $0Pa$ 77
3.5 Procédure de l'expérience d'oscillation autour de $0.3Pa$ 77
3.6 Réponse en déformation à un échelon de contrainte de $0.1Pa$ d'amplitude 78
3.7 Réponse en déformation à différentes fréquences d'oscillation et d'amplitude $0.1Pa$. 80
3.8 Contrainte subie par le matériau à différentes fréquences d'oscillation d'amplitude $0.1Pa$ 81
3.9 a) : Amplitude de la contrainte subie dans le régime d'état d'équilibre. b) : Comparaison des modules G' et G'' calculés à partir de l'équation Eq.3.10 et ceux analysés par le logiciel du rhéomètre (TA) 83
3.10 Réponse en déformation à une contrainte oscillante autour de $0.3Pa$ pour les fréquences de 3, 8 et $16Hz$ 84

4.1 Strain response for 2 successives creeps at 44Pa and 48Pa for the Carbopol solution (0.3%). Both stresses are about twice the yield stress. 91
4.2 Analogical diagram of the Maxwell-Jeffrey model 92
4.3 Creep of the n^{th} step 92
4.4 a)Reversibility test : three creeps applied for one sample of material, b)Response of three identical creeps applied for one sample of Ketchup for $\sigma \prec \sigma_y$ and $\sigma \succ \sigma_y$ . . . 95
4.5 Procedure of characterisation 96
4.6 Creep experiment for a Carbopol 0.3% at $48Pa$ applied stress. This is the same curve as in figure. Fig.4.1. Adjustment of Eq.4.6 : $G = 433,2Pa$, $\eta_1 = 1.7Pa.s$, $\eta_2 = 4143Pa.s$ 97
4.7 Successing creep in rise and descent for Carbopol 0.3% : a) Elastic modulus G, b)Elastic dissipation η_1, c)Viscosity η_2 and $\eta_{long-time}$ obtained at the end of creep . 100

4.8 Successing creep in rise and descent for Xanthan 0.2% : a) Elastic modulus G, b)Elastic dissipation η_1, c)Viscosity η_2 and $\eta_{long-time}$ obtained at the end of creep . 102

4.9 Successing creep in rise and descent for Ketcup : a) Elastic modulus G, b)Elastic dissipation η_1, c) Viscosity η_2 and $\eta_{long-time}$ obtained at the end of creep 103

5.1 Géométrie de Couette : cylindres coaxiaux 111

5.2 Nature des instabilités observées dans l'écoulement de Couette-Taylor viscoélastique 119

5.3 Géométrie des cylindres excentrés 120

5.4 Figure extraite de [111] : profils de vitesses normalisées pour différentes excentricités dans la région où l'entrefer est le plus petit($\theta = 180^0$) et dans la région où l'entrefer est le plus grand ($\theta = 0^0$). Les profils en lignes donnent les prédictions théoriques. Le symbole $\circ$ représente les mesures expérimentales obtenues pour le fluide newtonien. Le symbole $\bullet$ représente les mesures expérimentales obtenues pour les solutions de polymère. 122

5.5 Figure extraite de [112] : profils de vitesse normalisée. A droite l'excentricité $\delta = 0.5$. A gauche l'excentricité $\delta = 0.25$. Au-dessus, les résultats pour le plus petit gap ($\theta = 0°$), et en dessous, ceux pour le plus grand gap ($\theta = 180°$). Les ligne représentent les résultats analytiques pour différents fluides non newtoniens. Le symbole $\circ$ représente les mesures expérimentales obtenues pour le fluide newtonien. Le symbole $\bullet$ représente les mesures expérimentales obtenues pour les solutions de polymère. . . 123

5.6 Figure extraite de [114] : profils de vitesses pour différentes excentricités δ dans la région où l'entrefer est le plus grand, pour différents nombres de Weissenberg. Les profils en lignes donnent les prédictions théoriques pour le modèle d'Oldroyd-B. Le symbole $\bullet$ représente les mesures expérimentales obtenues pour les solutions de polymère avec la LDV. 124

6.1 Schéma illustrant le principe de la technique de vélocimétrie par images de particules (PIV) 128

6.2 Calcul du champ de vitesses par la corrélation croisée appliquée à la FFT 129

6.3 Vue général du dispositif expérimental (A. Gérard et C. Kahn) 131

6.4 Dispositif expérimental 132

6.5 Géométrie de mesure 133

6.6 Différentes configurations de géométries. A gauche : centrée, à droite : excentrée (Vue latérale). 134

6.7 Différentes configurations de géométries : centrée et excentrée (Vue de haut) 134

6.8 Mise au point du dispositif expérimental 135
6.9 Écoulement laminaire dans une géométrie de cylindres coaxiaux (Couette) 137
6.10 Profils de vitesses tangentielles v_θ d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien pour différents rayons r de l'entrefer (droit : $\theta = 2\pi$, gauche : $\theta = 0$, haut : $\theta = \pi$, bas : $\theta = -\pi$), ainsi que le profil de vitesse exacte calculé analytiquement pour une vitesse de rotation $\Omega = 10rad/s$. 139
6.11 Profils de vitesses radiales v_r d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien pour différents rayons r de l'entrefer (droit : $\theta = 2\pi$, gauche : $\theta = 0$, haut : $\theta = \pi$, bas : $\theta = -\pi$), pour une vitesse de rotation $\Omega = 10rad/s$. 139
6.12 Profils de vitesses tangentielles v_θ d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien pour différentes vitesses de rotation $\Omega = 1, 3, 5, 10rad/s$ ainsi que les profils de vitesse exactes calculés analytiquement pour chaque vitesse de rotation. 140
6.13 Lignes de courant calculées du champ de vitesse par PIV pour l'Emkarox® (fluide newtonien), A gauche : l'image de la mesure, A droite : les lignes de courant correspondantes. 141

7.1 Comportement rhéologique du Emkarox ® et du CMC 3%. Mesures réalisées avec le rhéomètre $AR2000$ et la géométrie cône-plan. 146
7.2 Comportement rhéologique du $Xanthane0.5\%$. Mesures réalisées avec le rhéomètre $AR2000$ et la géométrie cône-plan. 146
7.3 Profils de vitesse obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le Emkarox ® pour des vitesses de rotation du cylindre intérieur Ω = 1, 3, 5, et $10rad/s$. 148
7.4 Profils de vitesse obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le CMC 3% pour des vitesses de rotation du cylindre intérieur Ω = 1, 3, 5, et 10 rad/s. 148
7.5 Profils de vitesses obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le Xanthane 0.5% avec une vitesse de rotation du cylindre intérieur $\Omega = 1rad/s$. . . 149
7.6 Profils de vitesses obtenus par la mesure (PIV) et par les simulations numériques sur le Xanthane 0.5% avec une vitesse de rotation du cylindre intérieur $\Omega = 10rad/s$. . 149
7.7 Profil de vitesses dans une géométrie de couette obtenues par la PIV : Emkarox®, CMC 3% et Xanthane 0.5%. Comparaison avec les profils de vitesse calculés par Fluent 151
7.8 Lois de comportement déterminées pour le Emkarox ® 153
7.9 Lois de comportement déterminées pour le CMC 3% 154
7.10 Profil de vitesse en fonction de la contrainte locale du Xanthane 0.5%. 155
7.11 Loi de comportement déterminée pour le Xanthane 0.5% 157

7.12 Mesures expérimentales : Lignes de courant pour le Emkarox®, dans des géométries de trois excentricités : a) $\delta = 0.25$, b) $\delta = 0.5$ et c) $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$ 159

7.13 Simulations numériques : Lignes de courant pour le Emkarox®, dans des géométries où $\delta = 0.25$ et $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$ 160

7.14 Géométrie excentrées à 0.75. Axes où les profils sont représentés 161

7.15 Emkarox® : profils de vitesse tangentielle mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demis axe positif $[0, y^+[$ où $\theta = \pi/2$, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. 161

7.16 Emkarox® : profils de vitesse mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demis axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$: a) vitesse tangentielle. b) vitesse radiale, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. . . . 162

7.17 Emkarox® : profils de vitesse mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demis axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$: module de vitesse pour $\Omega = 10$ rad/s. 162

7.18 Emkarox® : lignes de courant observées au cours du temps : $t_1 \prec t_2 \prec t_3 \prec t_4$. . . . 163

7.19 Mesures expériementales : Lignes de courant pour le CMC 3%, dans des géométries de trois excentricités : a) $\delta = 0.25$, b) $\delta = 0.5$ et c) $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$ 164

7.20 Simulations numériques : Lignes de courant pour le CMC 3%, dans des géométries où $\delta = 0.25$ et $\delta = 0.75$ pour $\Omega = 5rad/s$ 165

7.21 CMC 3% : profils de vitesse tangentielle mesurés par PIV et calculées par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demi axe positif $[0, y^+[$ où $\theta = \pi/2$, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. 166

7.22 CMC 3% : profils de vitesse mesurés par PIV et calculés par Fluent dans la géométrie où $\delta = 0.75$ sur le demi axe positif $]x^+, -15]$ où $\theta = \pi$: a) vitesse tangentielle. b) vitesse radiale, pour différentes vitesses de rotations $\Omega = 1$, 3, 5 et 10 rad/s. 166

7.23 Xanthane 0.5% : profils de vitesse tangentielle mesurés par PIV dans la géométrie à cylindres ($\delta = 0.75$) sur le demi axe où $\theta = \pi/2$. A droite : $\Omega = 1$ rad/s. A gauche : $\Omega = 10rad/s$ 167

7.24 Xanthane 0.5% : profils de vitesses relatifs dans deux géométries à cylindres centrés $\delta = 0$ et excentrés $\delta = 0.75$ sur le demi axe où $\theta = \pi/2$ et $\Omega = 1rad/s$. 168

7.25 Simulations numériques (Cross à 4 paramètres) : Lignes de courant pour le Xanthane 0.5% dans le cas où $\delta = 0.75$ et $\Omega = 10rad/s$. 169

7.26 Comparaison entre mesures expérimentales et calculs numériques des profils de vitesse du Xanthane 0.5% dans la géométrie à cylindres excentrés dans le cas où $\delta = 0.75$ et $\Omega = 10 rad/s$. Profils sur les axes où $\theta = \pi/2$ 169

A.1 Etalonnage de la géométrie Vane. 178
A.2 Géométrie Vane 179
A.3 Détermination des paramètres géométriques du Vane moyen 180
A.4 Rhéogrammes de mesure avec la géométrie cône-plan et la géométrie vane 180

B.1 Paramètres viscoélastiques sous écoulement du CMC 3%. 184
B.2 Paramètres viscoélastiques sous écoulement du Xanthane 0.5%. 185

C.1 Maillage de la géométrie de Couette. $\delta = 0$ 188
C.2 Maillage de la géométrie des cylindres excentrés avec $\delta = 0.75$. 189
C.3 Profils de vitesse tangentielle v_θ d'un écoulement stationnaire d'un fluide newtonien dans une géométrie de Couette pour $\Omega = 10 rad/s$: Comparaison des profils exacte et celui calculé par Fluent. 190

Liste des tableaux

2.1 Paramètres du modèle de viscosité stationnaire de Quemada. 51

2.2 Détermination des longueurs spécifiques des solutions de Xanthane. 65

3.1 Caractéristiques de la géométrie utilisée. 76

7.1 Paramètres du modèle de Cross. 147

7.2 Gamme de vitesse de cisaillement dans l'entrefer pour l'Emkarox®. 153

7.3 Gamme de vitesse de cisaillement dans l'entrefer pour le CMC 3%. 154

7.4 Paramètres du modèle de loi de puissance dans deux gammes de vitesse de cisaillement ainsi que ceux de la foction ajustée, pour le Xanthane0.5%. 156

A.1 Paramètres géométriques de l'étalonnage du Vane. 179

C.1 Caractéristiques du Maillage. 189

Bibliographie

[1] D. Quemada. *Modélisation rhéologique structurelle*. Lavoisier, 2006.

[2] H.A. Barnes. The yield stress -a review or- everything flows. *J. Non-New. Fluid Mech.*, 81 :133–178, 1999.

[3] G. Couarraze and J.L. Grossiord. *Initiation à la rhéologie*. Lavoisier, 1983.

[4] R.B. Bird, R.C. Armstrong, and O. Hassager. *Dynamic of fluids*. A Wiley-Interscience Publication, 1987.

[5] P. Oswald. *Rhéophysique ou comment coule la matière*. Belin, 2005.

[6] G.P. Roberts and H.A. Barnes. New measurements of flow-curves for carbopol dispersions without slip artefacts. *Rheo. Acta*, 40 :499–503, 2001.

[7] P. Coussot. Macroscopic vs. local rheology of yield stress fluids. *J. Non-Newt. Fluid Mech. (in Edition)*, 2008.

[8] D. Quemada. Rheology of concentrated disperse systems ii. a model for non-newtonian shear viscosity in steady flows. *Rheol. Acta*, 17 :632–642, 1978a.

[9] C. Baravian, D. Vantelon, and F. Thomas. Rhéological determination of interaction potential energy for aqueous clay suspensions. *Langmuir*, 19 :8109–8114, 2003.

[10] D. Quemada. Rheology of concentrated disperse systems and minimum energy dissipation principle. i. viscosity concentration relationship. *Rheol. Acta*, 16 :82–94, 1977.

[11] G.P. Roberts, H.A. Barnes, and P. Carew. Modelling the flow behaviour of very shear-thinning liquids. *Chemical engineering Science*, 56 :5617–5623, 2001.

[12] P.R.S. Mendes and E.S.S. Dutra. Viscosity function for yield-stress liquids. *Ann. Phy.*, 14 :296–302, 2004.

[13] A. Benchabane. *Etude du comportement rhéologique de mélanges argiles-polymères. Effets de l'ajout de polymères*. Thèse : Université Louis Pasteur, 2006.

[14] F. Caton and C. Baravian. Plastic behavior of some yield stress fluids : from creep to long-time yield. *Rheol. Acta.*, 47, 2007.

[15] E. Guyon, J. P. Hulin, and L. Petit. *Hydrodynamique physique*. EDP Sciences/CNRS Éditions, 2001.

[16] C. Baravian, A. Lalante, and A. Parker. Vane rheometry with a large, finite gap. *Ann. Phy.*, 12 :81–87, 2002.

[17] Q. D. Nguyen and D. V. Boger. Charactérisation of yield stress fluids with concentric cylinder viscometer. *Rheo. Acta.*, 26 :508–515, 1987.

[18] H.A. Barnes and Q. D. Nguyen. Rotating vane rheometry-a review. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 98 :1–14, 2001.

[19] H.A. Barnes. A review of the slip (wal depletion) of polymer solutions, emulsions and particle suspensions in viscosimeters : its cause, character, and cure. *J. Non Newt. Fluid. Mech.*, 56 :221–251, 1995.

[20] J. L. Bonifas. *Contribution à l'étude de la viscosité de suspensions de bentonites*. Thèse : de l'ULP', 1998.

[21] M. Mooney. Explicit formulas for slip and fluidity. *J. Rheol.*, 2 :210–222, 1931.

[22] A. Yoshimur and R. Prud'homme. Wall slip corrections for couette and parallel disk viscometer. *J. Rheol.*, 2 :210–222, 1931.

[23] A. Magnin and J.M. Piau. Cone-and-plate rheometry of yield stress fluids. study of an aqueous gel. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 36 :85–108, 1990.

[24] L. Jossica, A. Briguet, and A. Magnin. Segregation under fow of objects suspended in a yield stress fuid and nmr imaging visualisation. *Chemical Engineering Science*, 57, 2002.

[25] I. Kreiger. the role of instrument inertia in the controled-stresse rheometers. *J. Rheol*, 34 :471–483, 1990.

[26] L.C.E. Struik. Free damped vibrations of linear viscoelastic materials. *Rheol. Acta.*, 6 :119–129, 1967.

[27] C. Baravian and D. Quemada. Correction of instrument inertia effects in controled stress rheometry. *Eur.Phys*, AP2 :189–195, 1998.

[28] C. Baravian and D. Quemada. Using instrumental inertia effects in controlled stress rheometers. *Rheol. Acta.*, 37 :223–233, 1998.

[29] F. Aloui, F. Rechimi, E. Dumont, and J. Legrand. Inverse method applied for the determination of the wall shear rate in a scraped surface heat exchanger using the electrochemical technique. *I. J. Electrochem. Sci.*, 3 :676–690, 2008.

[30] B. Feret. *Interactions dans les systèmes montmorillonite/Carboxymethylcellulose : application aux fluides de forage*. Thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie., 1992.

[31] J-L. SIMON. *Gomme xanthane : agent viscosant et stabilisant.* Techniques de l'Ingénieur, traité Agroalimentaire, 2007.

[32] S. Laneuville. *Etude de l'interaction associative entre la B-lactoglobuline et le xanthane natif ou le xanthane traité aux hautes pressions hydrodynamiques.* Thèse de doctorat. Université de Laval, 2004.

[33] N.P. Yevelampia, G.M. Pavlov, and E.I. Rjumtsev. Flow birefringence of xanthane and other polysaccharide solutions. *International Journal of Biological Macromolecules*, 26 :295–301, 1999.

[34] K-W. Song, Y-S. Kim, and G-S. Chang. Rheology of concentrated xanthan gum solutions :steady shear flow behavior. *Fibers and Polymers*, 7 :129–138, 2006.

[35] N.P. Yevalampieva, G.M. Pavlov, and E.I. Rjumtsev. Flow birefringence of xanthane and other polysaccharide solutions. *Int. J. Biological Macromolecules*, 26 :295–301, 1999.

[36] T.A. Camesano and K.J. Wilkinson. Single molecule study of xanthane conformation using atomic force microscopy. *Macromolecules*, 2 :1184–1191, 2001.

[37] J.M. Piau. Carbopol gel : Elastoviscoplastic and slippery glasses made of individual swollen sponges meso- and macroscopic properties, constitutive equations and scaling laws. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 2007.

[38] J.O. Carnali and M.S. Naser. The use of delute solution viscometry to caracterize the network properties of carbopol microgel. *Rheo. Acta*, 270 :183–193, 1992.

[39] J. Mewis. Thixotropy - a general review. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 6 :1–20, 1979.

[40] H.A. Barnes. Thixotropy - a review. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 70 :1–33, 1997.

[41] De Gennes. *Scalling concepts in polymer physics.* Cornell University Press, 1979.

[42] J. G. Southwick, A. M. Jamieson, and J. Blackwell. Quasi-elastic light scattering studies of semidilute xanthan solutions. *Ann. Phy.*, 14 :1728–1732, 1981.

[43] A. Einstein. A new determination of molecular dimensions. *Ann. Phy.*, 19 :289–305, 1906.

[44] G. K. Betchelor and J.T. Green. The determination of bulk stress in a suspension of spherical particles to order c^2. *J. Fluid Mech.*, 56 :401–427, 1972.

[45] W.B. Russel and A.P. Gast. Nonequilibrium statistical mechanics of concentrated colloidal dispersions : Hard sphères in weak flows. *J. Chem. Pys.*, 84 :1815–1827, 1986.

[46] D.M. Heyes and H. Sigurgeirsson. The non newtonian viscosity of concentrated stabilized dispersions. *J. Rheol*, 48 :223–248, 2004.

[47] W.B. Russel, D.A. Saville, and W.R. Schowalter. *Colloidal dispersions*. Cambridge University Press, 1989.

[48] C.L.A. Berli and D. Quemada. Rheological modeling of microgel suspensions involving solid-liquid transition. *Langmuir*, 16 :7968–7974, 2000.

[49] R. Buscall. Effect of long-range repulsive forces on the viscosity of concentrated latices : Comparison of experimental data with an effective hard-sphere model. *J. Chem. Soc., Faraday Trans.*, 87 :1365–1370, 1991.

[50] J.P. Decruppe, S. Lerouge, and H. Azzouzi. Rayleigh scattering and birefringence measurement in colloïdal solutions. *Phys. Rev.*, 71 :011503–1, 2005.

[51] J.P. Decruppe. Rhéologie et biréfringence d'écoulement, du macroscopique au microscopique. *Rhéologie*, 10 :1–12, 2006.

[52] R. Feynman. *Mécanique 2*. Dunod, 1998.

[53] A.S. Lodge. A network theory of flow birefringence and stress in concentrated polymer solutions. *Trans. Faraday Soc.*, 52 :120–130, 2006.

[54] D. Aschoff and P. Shümmer. Evaluation of insteady couette-flow measurement under the influence of fluide inertia. *J. Rheol*, 37(6) :1237–1251, 1993.

[55] J.P. Hughes, T.E.R. Jones, and J.M. Davies. Concentric cylinder end effects and fluide inertia effects in controlled stress rheometry i : numerical simulation. *J. Non-Newtonian fluid Mech.*, 77 :79–101, 1998.

[56] G. Bûhme and M. Stenger. On the influence of fluid inertia in oscillatory rheometry. *J. Rheol*, 34(3) :415–424, 1990.

[57] F. Ding, A.J. Giacomin, R.B. Bird, and C-B. Kweon. viscous dissipation with fluid inertia in oscillatory shear flow. *J. Non-Newtonian Fluid Mech*, 86 :359–374, 1999.

[58] K. Dullaert and J. Mewis. J. thixotropy : Build up and breakdown curves during flow. *J. Rheol*, 49(6) :1213–1230, 2005.

[59] U. Zölzer and H.F. Eicke. Free oscillatory shear measurements - an interesting application of constant stress rheometers in the creep mode. *Rheol. Acta.*, 32 :104–107, 1993.

[60] C. Baravian, G. Benbelkacem, and F. Caton. Unsteady rheometry : can we characterize weak gels with a controlled stress rheometer ? *Rheol.Acta*, 46 :577–581, 2007.

[61] N.Y. Yao, R.J. Larsen, and D.A. Weitz. Probing nonlinear rheology with inertio-elastic oscillations. *J. Rheol.*, 52 :1013–1025, 2008.

[62] A.J.P. Frank. *Importance of inertia for controlled stress rheometers. In : Theoretical and applied rheology*. Elsevier Science, 1992.

[63] R. Roscoe. Free damped oscillations in viscoelastic materials. *BRIT. J APPL. PHYS*, 2 :1261–1266, 1969.

[64] T. Iseki, M. Takahachi, H. Hattori, T. Hatakeyama, and H. Hatakeyama. Viscoelastic properties of xanthane gum hydrogels annealed in the sol state. *Food Hydrocoloids*, 15 :503–506, 2001.

[65] J.D. Sherwood and G.H. Meeten. The use of the vane to measure the shear modulus of linear elastic solids. *J.Non-Newtonian Fluid Mech*, 41 :101–118, 1991.

[66] V. Bertola, F. Bertrand, H. Tabuteau, D. Bonn, and P. Coussot. Wall slip and yielding in pasty materials. *J. Rheol.*, 47 :1211–1226, 2003.

[67] M. Couette. *Etude sur le frottement des liquides.* Ann. Chem. Phys.21, p. 433, 1890.

[68] L. Rayleigh. On the dynamics of revolving fluids. *Proc. Roy. Soc. Lond.*, A93 :148–154, 1916.

[69] P.G. Drazin and W. H. Reid. *Hydrodynamic stability.* Cambridge University Press, 1981.

[70] G.I. Taylor. stability of a viscous liquid contained between tow rotating cylinders. *Phil. Trans. Soc. Lond*, A223 :289–343, 1923.

[71] B. Benabes V. Sobolic and G. Cognet. Study of taylor-couette flow using a three-segment electrodiffusion probe. *J. App. Electrochemistry*, 25 :441–449, 1955.

[72] D. Coles. Transition in circular couette flow. *J. Fluid Mech.*, 21 :385–425, 1965.

[73] A. Bouabdellah and G. Cognet. Laminar-turbulent transition in taylor-couette flow. *Laminar-turbulent transition*, 25 :368–377, 1980.

[74] P.R. Fenstermasher, L. Swinney Harry, and J.P. Gollub. Dynamical instabilities and the transition to chaotic taylor vortex flow. *J. Fluid Mech.*, 94 :103–128, 1979.

[75] P. Gregory King, Y. Li, W. Lee, L. Swinney Harry, and S. Philip Marcus. wave speeds in wavy taylor-vortex flow. *J. Fluid Mech.*, 141 :365–390, 1984.

[76] R.C. DiPrima and E.H. Rogers. Computing problems in nonlinear hydrodynamic stability. *Phy. Fluids*, 12 :II155–II165, 1969.

[77] H. Reichelmann and K. Nanbu. Three-dimensional simulation of wavy taylor vortex flow by direct simulation monte carlo method. *Phy. Fluids*, 9 :811–813, 1997.

[78] H. Chaté and P. Manneville. Transition to turbulence via spatio-temporal intermittency. *Phys. Rev. Lett.*, 58 :112–115, 1987.

[79] P.W. Colovas and C. D. Andereck. Turbulence bursting and spatiotemporal intermittency in the counterrotating taylor-couette system. *Phys. Rev.*, 55 :2736–2741, 1997.

[80] N. Latrach. *Etude expérimentale des modes supérieurs des instabilités d'écoulements newtoniens ou viscoélastiques dans le système de Couette-Taylor*. Université du Havre, 2005.

[81] H.A. Snyder. Wave-number selection at finite amplitude in rotating couette flow. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 35 :273–298, 1969.

[82] R.G. Larson. *The structure and Rheology of Complex Fluids*. Oxford University Press, 1999.

[83] RF. Ginn and MM. Denn. Rotational stability in viscoelastic fluids theory. *AIChE J.*, 15 :450–454, 1969.

[84] G.S. Beavers and D.D. Joseph. Tall taylor cells in polyacrilamide solutions. *Phys. Fluids*, 17 :650–651, 1974.

[85] A. Groisman and V. Steinberg. Mechanism of elastic instability in couette flow of polymer solutions. *Phys. Fluids*, 10 :2451–2463, 1998.

[86] B.M. Baumert and S.J. Muller. Axisymmetric and non-axisymmetric elastic and inertio-elastic instabilities in taylor-couette flow. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 83 :33–69, 1999.

[87] M. Avgousti and A.N. Beris. Non-axisymmetric modes in viscoelastic taylor-couette flow. *J. Non-Newtinian Fluid Mech.*, 50 :255–251, 1993.

[88] O. Crumeyrolle, M. Grisel, and I. Mutabazi. Experimental study of inertioelastic couette-taylor instability modes in dilute and semidilute polymer solutions. *Physics of Fluids*, 14 :1681–1688, 2002.

[89] R.G. Larson, E.S.G. Shaqfeh, and S.J. Muller. A purely elastic instability in taylor-couette flow. *J. Fluid Mech.*, 218 :573–600, 1990.

[90] Y.L. Joo and E.S. Shaqfeh. The effects of inertia on the viscoelastique dean and taylor-couette flow instabilities with application of coating flows. *Physi. Fluids*, 4 :2415–2431, 1992.

[91] O. Crumeyrolle, N. Latrache, A. Ezersky, and I. Mutabazi. Instability modes observed in a viscoelastic couette-taylor flow. *Mechanique and industrie*, 4 :397–409, 2003.

[92] O. Crumeyrolle, N. Latrache, I. Mutabazi, and A. Ezersky. Instabilities with shear-thinning polymer solutions in the couette-taylor system. *J. Physics*, 14 :78–93, 2005.

[93] M.M. Kamal. Separation in the flow between eccentric, rotating cylinders. *J. Basic Eng. Tran. ASME*, 10 :717–724, 1966.

[94] J.M. Ottino. *The Kinematics of Mixing : Stretching, Chaos, and Transport*. Cambridge University Press, 1989.

[95] G.H. Wannier. A contribution to the hydrodynamics of lubrication. *Q. Appl. Math*, 8 :1–32, 1950.

[96] B. Ballal and R.S. Rivlin. Flow of a newtonian fluid between eccentric rotating cylinders : Inertial effects. *J. Arch. Ratl. Mech. Anal.*, 62 :237–294, 1976.

[97] R.C. Diprima. Flow between eccentric rotating cylinders. *J. Lubr. Techno. Trans. ASME*, 94 :266–274, 1972.

[98] G.S. Ritchie. On the stability of viscous flow between eccentric rotating cylinders. *J. Fluid Mech.*, 32 :131–144, 1968.

[99] P. Castle, F.R. Mobbs, and P.H. Markho. Visual observations and torque measurements in the taylor vortex regim between eccentric rotating cylinders. *J. Lubri. Tech. Trans. ASME. Series F*, 93 :121–129, 1971.

[100] A. San Andree and A.Z. Sreri. Flow between excentric rotating cylinders. *J. Appl. Mech.*, 51 :869, 1984.

[101] G.W. Roberts, A.R. Davies, and T.N. Phillips. Three-dimensional spectral approximations to stokes flow between eccentrically rotating cylinders. *Int. J. Numer. Methods Fluids*, 13 :217, 1991.

[102] S. Kumar and G.H. Homsy. Chaotic advection in creeping flow of viscoelastic fluids between slowly modulated eccentric cylinders. *Phys. Fluids*, 8 :1774–1787, 1996.

[103] E. Français. *Etude du mélange dans un écoulement de stocks en géométrie de Couette excentrée*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 1992.

[104] I. Davies and K. Walter. *The Rheology of Lubrificants*. T.C. Davenport, Applied Science Publishers, 1973.

[105] B.Y. Ballal and R.S. Rivlin. Flow of a viscoelastic fluid between eccentric rotating cylinders. *Trans. Soc. Rheol*, 20 :65, 1976.

[106] S. Kumar and G.H. Homsy. Finit element calculation of viscoelastic flow in a journal of brearing : Part i. small eccentricities. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 16 :141–172, 1983.

[107] R.C. King, M.R. Apelian, R.C. Armstrong, and R.A. Brown. Numerically stable finite element techniques for viscoelastic calculations in smooth and singular geometries. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 29 :147–216, 1988.

[108] X. Huang, N. Phan-Thien, and R.I. Tanner. Vidcoelastic flow between eccentric rotating cylinders : nustructured control volume method. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 64 :71–92, 1996.

[109] M.P. Escudier, P.J. Oliveira, and F.T. Pinho. Fully developed laminar flow of purely viscous non-newtonian liquids through annuli, including the effects of eccentricity and inner-cylinder rotation. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 23 :52–73, 2002.

[110] D. Grecov and J.R. Clermont. Numerical simulation of non-stationary flows of non-newtonian fluids between cencentric cylinders by stream-tube method and domain decomposition. *Rheol. Acta*, accepted, 2007.

[111] A. Berker, M.G. Bouldin, S.J. Kleis, and W.E. VanArsdale. Effect of polymer on flow in journal bearings. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 56 :333–347, 1995.

[112] D.A. Siginer and S.I. Bakhtiyarov. Flow drilling fluids in eccentric annuli. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 78 :119–132, 1997.

[113] I.M. Dris and E.S.C. Shaqfeh. Experimental and theoretical observations of elastic instabilities in eccentric cylinder flows : local versus global instability. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 80 :1–58, 1998.

[114] I. Dris and E.S.C. Shaqfeh. Flow of a viscoelastic fluid between eccentric cylinders : impact on flow stability. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 80 :59–87, 1998.

[115] B. Ouviev, E. Windhab, P. Braun, and Birkhofer. Industrial application og ultrasound based in-line rheometry : From stationary to pulsating pipe flow of chcolate suspension in preccrystalization process. *Rev. Sci. Instr.*, 75 :3164–3168, 2004.

[116] N. Dogan, M.J. McCarthy, and R.L. Powell. Mesurement polymer melt rheology using ultrasonics base in line rheometry. *Mes. Sci. Tech.*, 16 :1684–1690, 2005.

[117] P. Callaghan. Rheo-nmr : nuclear magnetic resonance and the rheology of complexe fluids. *Rep. Prog. Phys.*, 62 :599–668, 1998.

[118] E. Fukushima. Nuclear magnetic resonance as a tool to study flow. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 31 :95–123, 1999.

[119] M. Ramirez-Gilly, L.P. Martinez-Padilla, and O. Manero. Particle image velocimetry applied to suspensions of millimetric-size particles using a vane in a large-baffled-cup rheometer. *Journal of Food Engineering*, 78 :1117–1126, 2007.

[120] B.M. Marin-Santibanez, J. Perez-Gonzalez, L. De Vergas, F. Rodrigez-Gonzalez, and G. Huelsz. Rheometry-piv of shear-thickening wormlike micelles. *American Chemical Society*, 22 :4015–4026, 2006.

[121] M. Raffel, C.E. Willert, and Kompenhans. *J. Particle Image Velocimetry-practical Guide.* Springer, 1998.

[122] S. Jarny and P. Coussot. Caractérisation des écoulements de pâte dans une géométrie couette. *Rhéologie*, 2 :52–63, 2002.

[123] S. V. Patankar. *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow.* McGraw-Hill, New-York, 1980.

INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :
Monsieur Albert MAGNIN, Directeur de Recherche, INPG, Grenoble

Monsieur Innocent MUTABAZI, Professeur, Université du Havre, Le Havre

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Madame BENBELKACEM Ghania

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Viscoélasticité et écoulements de fluides structurés"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Mécanique et Energétique** »

Fait à Vandoeuvre, le 29 janvier 2009
Le Président de l'I.N.P.L.,
F. LAURENT



Résumé

Viscoélasticité et écoulements de fluides structurés

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons aux différents comportements de fluides structurés (solutions aqueuses de polymères, suspensions), sous écoulements cisaillés. Dans la première partie, nous donnons une description globale des objets constituant le matériau en utilisant une modélisation structurelle, d'une part et en effectuant des mesures de biréfringence pour qualifier l'anisotropie des objets, d'autre part. A travers la loi tentio-optique, nous montrons que le comportement des objets ne dépend que de la contrainte appliquée. En outre, nous étudions les conditions de mesures objectives pour mener une caractérisation rigoureuse, en comparant des mesures de fluage et d'oscillations et en utilisant une approche analytique. Ce qui va permettre de développer une méthode d'identification des paramètres viscoélastiques et leurs évolutions sous cisaillement, dans le régime linéaire et non linéaire. La deuxième partie concerne les écoulements bidimensionnels de ces fluides dans une géométrie de cylindres coaxiaux centrés et excentrés, à grand entrefer. Le dispositif expérimental est validé par des mesures sur un fluide newtonien. L'objectif est d'étudier le comportement local de différents fluides en utilisant la technique de la PIV. Pour cela, nous réalisons un dispositif expérimental fiable et suffisamment précis pour accéder au champs de vitesse instantané dans tous l'entrefer. Les mesures nous permettent d'accéder à la loi de comportement locale de chaque matériau que nous comparons avec la loi de comportement « globale » donnée par le rhéomètre dans le cas de la géométrie centrée. De plus, des simulations numériques sur Fluent, ont été effectuées pour compléter notre étude. Les résultats obtenus pour des écoulements laminaires, de différents fluides : newtonien, peu rhéofluidifiant, très rhéofluidifiant, montrent qu'il est possible de décrire et prédire le comportement des fluides newtoniens et faiblement rhéofluidifiants mais les modèles classiques existants dans Fluent ne sont pas capables de décrire le comportement des fluides très rhéofluidifiant qui présentent une très forte hétérogénéité des gradients de vitesse dans l'entrefer.

Mots clé : Viscoélasticité. Solutions de polymère. Description structurelle en rhéologie. Biréfringence du Xanthane. Rhéomètres à contrainte imposée. Effets d'inertie. Loi de comportement. Ecoulements entre deux cylindres.

Abstract

Viscoelasticity and structured fluid flows

Under this thesis, we look at the different behaviors of structured fluids (aqueous solutions of polymers, suspensions) under sheared flow. In the first part, we give a comprehensive description of the items constituting the material using a structural modeling, on the one hand and carrying out birefringence measures to qualify anisotropy objects on the other. Through the tentio-law, we show that the behavior of objects depends only on the applied stress. In addition, we study the conditions of objective measures to conduct a rigorous characterization, comparing creep and oscillations measures, and using an analytical approach. This will help develop a method for identifying viscoelastic parameters and their developments under shear, in both a linear and a no linear regime. The second part concerns the two-dimensional flows of fluids in a coaxial cylinder geometry centered and eccentred, in a wide gap. The objective is to study the local behavior of different fluids using the PIV technic. To do this, we realize an experimental reliable and accurate enough, in all the gap. The experimental device is validated by measurements on a Newtonian fluid. The measures allow to access the local law behavior of each material that we compare with the overall behavior of law given by the rheometer in the case of centered geometry. In addition, digital simulations on Fluent, were made to complement our study. The results for laminar flow, for different fluids : newtonian, little rhéofluidifiant and very rhéofluidifiant, show that it is possible to describe and predict the behavior of some fluid but the existing model in Fluent can not describe the behavior of very rheofluidifiant fluids which have a very strong heterogeneity gradients speed in the gap.

Keywords : Viscoelasticity. Polymer solutions. Structural descriptions. Birefringence of Xanthane. Controled stress rheometer. Innertia effects. Behavior law. Flow between two cylinders.