HAL open science

Rhéophysique des suspensions granulaires vibrées

Caroline Hanotin

To cite this version:

Caroline Hanotin. Rhéophysique des suspensions granulaires vibrées. Autre [cond-mat.other]. Université de Lorraine, 2014. Français. NNT : 2014LORR0150 . tel-01751185

HAL Id: tel-01751185

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01751185

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.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

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

École doctorale EMMA

Rhéophysique des suspensions granulaires vibrées

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 13 Novembre 2014

pour l'obtention du

Doctorat de l'Université de Lorraine

(Mention Mécanique et Energétique)

par

Caroline Hanotin

Composition du jury

Examinateurs :	Philippe Gondret	Professeur, FAST, Paris
	Elisabeth Lemaire	Directrice de recherche CNRS, LPMC, Nice
	Laurent Michot	Directeur de recherche CNRS, PhENix, Paris
	Christian Wagner	Professeur, Experimentalphysik-AG Wagner, Saarbrücken
Rapporteurs :	Renaud Delannay	Professeur, IPR, Rennes
	Guillaume Ovarlez	Directeur de recherche CNRS, Navier, Champs sur Marne
Encadrants :	Philippe Marchal	Ingénieur de recherche CNRS, LRGP, Nancy
	Sébastien Kiesgen de Richter	Maître de conférences, LEMTA, Vandoeuvre-lès-Nancy
Invité :	Michel Lebouché	Professeur émérite, LEMTA, Vandoeuvre-lès-Nancy

Laboratoire d'énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée - UMR 7563

Université de Lorraine

2 Avenue de la Forêt de Haye TSA 60604 - 54518 VANDOEUVRE CEDEX, France

Remerciements

Mes premiers remerciements vont à Philippe Marchal, mon directeur de thèse, et à Sébastien Kiesgen de Richter, mon co-directeur de thèse, pour leur parfait encadrement durant ces trois années de thèse. Tous les deux ont fait preuve d'une grande disponibilité à mon égard, que ce soit sur le plan humain ou sur le plan professionnel. Philippe, je te remercie d'avoir accepté de reprendre la direction de cette thèse suite au décès de Christophe, tu as été un directeur de thèse parfait. Bienveillant, toujours à l'écoute, généreux, dynamique, tu as su me guider tout au long de cette thèse. Sébastien, je te remercie de m'avoir donné goût à la recherche, depuis le stage de master 2 jusqu'à la fin de cette thèse. Je suis admirative de ta culture scientifique, de tes idées d'expériences et de tes capacités de pédagogue. Par leur soutien inconditionnel, Philippe et Sébastien ont su me donner confiance en moi. Attentifs à mon avenir professionnel, je tiens à dire que pour moi ce sont plus que des directeurs de thèse, ce sont des personnes formidables avec qui je souhaiterais continuer à travailler à l'avenir. Encore MERCI pour ces trois fabuleuses années !

Je tiens également à remercier Laurent Michot, qui a participé à cette aventure. Le souvenir que je garderai à jamais c'est bien évidemment les nuits au synchrotron. Sans toi, je n'aurai pas eu l'opportunité de vivre une telle expérience. Pense à moi si tu as besoin de quelqu'un pour faire un run ! Au-delà du synchrotron, je tiens à dire que j'ai été très contente de te rencontrer et j'espère qu'on aura l'occasion de retravailler ensemble.

Je remercie également l'ensemble du LEMTA :

- le directeur du laboratoire, Fabrice Lemoine, pour m'avoir accueillie au sein du laboratoire
- les secrétaires : Irène (ou ma seconde maman !), Valérie, Céline, Dalida, Edith, Fatiha, Françoise, qui sont réactives pour toutes les démarches administratives
- les ingénieurs et techniciens : Eric, Franck, Jamel, Mathieu, Simon, Alain, pour leur contribution (et pas des moindres) à l'élaboration des expériences
- les anciens collègues du bureau -012 : Adrian Marie, Claire, Sylvain, Anthony, Guillaume, Jérémie et les nouveaux : Sébastian, Miloud et Farhad (qui n'a pas contribué à mon régime avec tous ses gâteaux)
- les anciens et nouveaux doctorants : Lionel, Valentin, Vincent, Clément, Pierre, Waseem, Sofyane, Thomas, Mathieu, Birger, Mondher, Bamdad, Zakariya, Blandine, Jing, Mathilde, Ryad ...
- les anciens et nouveaux post-doctorants : Assma, Yassine, Mohammed, Amir ...
- les permanents : Julia, Cédric, Julien, Nicolas, Maude, Christel, Mathieu, Ophélie, Laurent, Alexandre, Papi Chenu, Yves, Ludovic, Jerôme, Gaël, Olivier L., Oliver B., Yohan, Sébastien, Sophie, Jean-Christophe, Christian, Feina, Stéphane ...

Je tiens tout particulièrement à remercier :

- Lionel, mon vosgien préféré, pour sa gentillesse, son écoute (et pour les superbes cadeaux de ma

soutenance)
- Vincent, pour ta bonne humeur et ton rire magique et bien évidemment les pauses goûter sur le banc
- Valentin, pour les discussions sur la vie en général et pour les quelques soirées tarot que nous avons pu faire avec Dimitri et Jennifer
- Papi Chenu et Yves, pour les pauses café de 10h (même si j'avoue que je vous ai abandonné la dernière année)
- Irène et Valérie, pour les moments « confidences »
- Zakariya, pour tes réflexions légendaires (attention au claquage de porte)
- Sofyane, mon prince Abbou préféré, et pour ses amitiés à Maxou
- Thomas (le faillot), Mathieu (l'artiste du LEMTA), Birger, Jing pour leur bonne humeur lors des somptueux repas du RU et des pauses goûter (ca va me manquer tout çà)
- Nicolas, pour ta bonne humeur et tes conseils pré-soutenance (attention Coralie !)
- Alexandre, mon co-voitureur, mon co-employeur de nounou, et mon (presque) voisin
- Assma, pour tes précieux conseils de préparation de soutenance (et pour l'effet magique des animations)

Je remercie également les personnes du Gemico, pour leur bon accueil et leur bonne humeur : Véronique, Yao, Amal, Eve, Christophe, Cécile, Hervé.

J'en profite pour remercier mes parents qui m'ont toujours encouragée dans mes études et qui m'ont toujours donné les moyens de le faire. Je remercie mon frère, Sébastien, et ma sœur, Maud, qui ont fait le déplacement pour ma soutenance, ce qui m'a beaucoup touché. Je remercie également Laura, ma belle-sœur. C'est l'occasion pour moi de dire ici que j'ai la chance d'avoir une famille soudée et merveilleuse. Je remercie mon mari, Florian, qui a toujours cru en moi et qui a le courage de me suivre pour que je réalise ma passion. Je ne te le dis pas souvent, mais j'ai de la chance de t'avoir et je te remercie d'être là tout simplement. Je pense également à mon fils qui n'a pas eu une mère très présente ces temps ci et qui a donc fait preuve de patiente, je t'aime mon petit chéri. Je remercie également mes amis, Mélanie, Audrey, Lauriane, Julien, Vanessa, Olivier, Lucie, Mélanie du sud, Jeanne Marie, Floriane, qui ont toujours été présents et qui m'ont toujours soutenu. Je remercie également le duo Christiane et Christian, Nadine et Jean Marc, Brigitte, Lucette.

Cette thèse n'aurait pas eu lieu sans Christophe Baravian. C'est grâce à lui si j'en suis là aujourd'hui. J'ai connu Christophe en tant qu'enseignant, encadrant de stage et directeur de thèse. A chaque fois, j'ai été impressionnée par son aisance et sa simplicité à transmettre des concepts scientifiques, même les plus complexes. Je me souviens de lui en train de m'expliquer comment marche cet appareil si mystérieux qu'est le rhéomètre... Il a su me donner goût à la recherche en me montrant que décrire des phénomènes physiques c'est comme raconter une petite histoire. Au-delà de ses capacités scientifiques et pédagogiques, Christophe a su me donner confiance en moi, notamment en me poussant loin dans les études, chose que je n'aurai jamais faite sans son soutien.

A la mémoire de Christophe Baravian.

Sommaire

Notations et symboles **1**

Introduction **9**

Chapitre 1 Généralités **15**

1.1 Notions de rhéologie 16

1.1.1 Contraintes et déformations dans un fluide 16

1.1.2 Fonctions matérielles 18

1.2 Les suspensions granulaires 20

1.2.1 Définitions et enjeux 20

1.2.2 Interactions 25

1.2.2.1 Contacts élastiques 25

1.2.2.2 Contacts frictionnels 25

1.2.2.3 Contacts lubrifiés 27

1.2.2.4 Contacts collisionnels 28

1.2.3 Mesures rhéologiques - Loi de comportement 29

1.2.3.1 Contrainte seuil 29

1.2.3.2 Contraintes normales et dilatance 31

1.2.3.3 Rhéofluidification et rhéoépaississement 33

1.2.3.4 Migration 34

1.2.4 Difficultés d'une mesure rhéologique classique 35

1.3 Modélisation théorique de la viscosité des suspensions granulaires sous cisaillement . . 36

1.3.1 Analyse dimensionnelle - Variables pertinentes 36

1.3.2 Relation viscosité-fraction volumique 39

1.4 Comportement sous vibrations de milieux granulaires 41

1.4.1 Influence des vibrations sur le comportement des milieux granulaires secs . . . 41

1.4.2 Influence des vibrations sur le comportement des suspensions granulaires . . . 45

1.5 Objectifs de la thèse 46

Chapitre 2 Étude du comportement rhéologique à l'échelle macroscopique **49**

2.1 Introduction 50

2.2 Matériel et Méthodes 51
2.2.1 Dispositif expérimental : le rhéomètre à poudre 51
2.2.2 Caractéristiques de la suspension granulaire 59
2.2.3 Préparation des échantillons 62
2.3 Comportement rhéologique en régime permanent 65
2.3.1 Effet des vibrations sur le comportement rhéologique 65
2.3.2 Effet du fluide interstitiel sur le comportement rhéologique d'une suspension granulaire vibrée 68
2.3.3 Régime d'écoulement dominé par l'écoulement de cisaillement 70
2.3.4 Régime d'écoulement dominé par les vibrations 71
2.3.4.1 Étude du régime dominé par les forces visqueuses ($Re_p < 1$) 74
2.3.4.2 Étude du régime dominé par les forces inertielles ($Re_p > 1$) 78
2.3.5 Conclusion 79
2.4 Modélisation du comportement rhéologique en régime permanent et transitoire 82
2.4.1 Abstract 82
2.4.2 Introduction 83
2.4.3 Model 85
2.4.4 Experimental section 89
2.4.4.1 Material and methods 89
2.4.4.2 Experimental procedure 91
2.4.5 Comparison of the model with rheological experiments 92
2.4.5.1 Response to a stress step 92
2.4.5.2 Response to a continuous stress ramp 95
2.4.5.3 Response to a sinusoidal stress 96
2.4.5.4 Consistency of the model 99
2.4.6 Evolution of the model parameters as a function of Pe_{lub} 100
2.4.7 Discussion 102
2.4.8 Conclusion 103
2.5 Ouverture : application aux suspensions granulaires bidisperses 106
2.5.1 Abstract 106
2.5.2 Introduction 106
2.5.3 Experimental section 108
2.5.3.1 Materials 108
2.5.3.2 Rheological measurements 108
2.5.4 Results and discussion 109
2.5.4.1 Viscosity of concentrated monodisperse suspensions subjected to vibrations 109

2.5.4.2 Low shear viscosity of concentrated bidisperse suspensions subjected to vibrations . . . 114
2.5.5 Conclusion . . . 120
2.5.6 Appendix . . . 121

Chapitre 3 Étude des propriétés dynamiques à l'échelle du grain 125
3.1 Introduction . . . 126
3.2 Théorie de la diffusion dynamique de la lumière . . . 128
3.2.1 Diffusion simple de la lumière . . . 128
3.2.2 Diffusion multiple de la lumière . . . 131
3.2.3 Diffusion de la lumière multispeckle . . . 138
3.3 Étude des propriétés dynamiques aux temps longs par MSDWS et par spectroscopie mécanique . . . 142
3.3.1 Abstract . . . 142
3.3.2 Introduction . . . 143
3.3.3 Mechanical spectroscopy . . . 144
3.3.3.1 Experimental section . . . 144
3.3.3.2 Results . . . 146
3.3.4 Comparison with Diffusing Wave Spectroscopy measurements . . . 150
3.3.4.1 Experimental section . . . 150
3.3.4.2 Results . . . 153
3.3.5 Conclusion . . . 157
3.4 Étude des propriétés dynamiques aux temps courts par DWS . . . 159
3.4.1 Matériel et méthodes expérimentales . . . 159
3.4.2 Résultats et discussions . . . 164
3.4.3 Différence de comportement entre les temps longs et les temps courts . . . 170
3.4.4 Ouverture : application à la micro-rhéologie . . . 171

Chapitre 4 Ouverture : Rhéométrie à chute de bille par Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) 177
4.1 Introduction . . . 178
4.2 Théorie de l'Imagerie par Résonance Magnétique . . . 179
4.2.1 Interaction noyau-champ magnétique . . . 179
4.2.2 Principe de la Résonance Magnétique Nucléaire . . . 180
4.2.3 Principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique . . . 184
4.3 Matériel et méthodes . . . 187
4.4 Équation du mouvement . . . 190
4.4.1 Équation générale . . . 190
4.4.2 Cas particuliers . . . 192

4.5 Résultats et discussion 193
4.5.1 Dynamique du système 194
4.5.2 Évolution des paramètres α et K en fonction de la viscosité du fluide interstitiel et des paramètres de vibrations 196
4.5.3 Conclusion 201

Conclusion générale et perspectives **203**

Bibliographie **207**

Annexe A **225**

Annexe B **231**

Annexe C **239**

Notations et symboles

Lettres latines

a_p (m.s^{-2})	Accélération
A (m)	Amplitude de vibration
$\mathbf{B_0}$ (T)	Champ magnétique extérieur
c (m.s^{-1})	Célérité de la lumière
c_1, c_2	Constantes
C (N.m)	Couple imposé par le rhéomètre
C_f (N.m)	Couple aléatoire fluctuant
d (m)	Diamètre d'une particule
d_L, d_S (m)	Diamètre d'une grosse et d'une petite particule
$\bar{d}$ (m)	Diamètre effectif
d$\mathbf{F}$ (N)	Force sur un élément de surface
dS (m^2)	Aire d'un élément de surface
D (m^2.s^{-1})	Coefficient de diffusion
D_l (m^2.s^{-1})	Coefficient de diffusion des photons
$\boldsymbol{D}$ (s^{-1})	Tenseur des gradients de vitesses
De	Nombre de Déborah
E	Module d'Young (Pa) (Chapitre 1)
	Champ électrique total diffusé (V.m^{-1}) (Chapitre 3)
$\boldsymbol{E}$	Tenseur des gradients de déplacement
E_c (J)	Énergie cinétique

E_{el} (J)	Énergie élastique
E_p (V.m^{-1})	Amplitude du champ électrique pour un chemin « p »
E_v (J)	Énergie mécanique de vibration
E_I (V.m^{-1})	Amplitude du champ électrique incident
E_0 (V.m^{-1})	Amplitude du champ électrique polarisé perpendiculairement au plan de diffusion
f (Hz)	Fréquence de vibration
f_b (Hz)	Fréquence de réorganisation granulaire
f_0 (Hz)	Fréquence de résonance
F_0 (N)	Amplitude de la force harmonique $\mathbf{F_{ext}}$
$\mathbf{F_{ext}}$ (N)	Force harmonique imposée par le pot vibrant
$\mathbf{F_f}$ (N)	Force de friction solide
$\mathbf{F_{Hertz}}$ (N)	Force élastique de Hertz
$\mathbf{F_{Hooke}}$ (N)	Force de Hooke
$\mathbf{F_{lub}}$ (N)	Force de lubrification
$\mathbf{F_v}$ (N)	Force de frottement visqueuse
$\mathbf{F_R}$ (N)	Force de rappel
G (Pa)	Module de cisaillement
G_M (Pa)	Module de cisaillement dans le modèle de Maxwell
G' (Pa)	Module élastique
G'' (Pa)	Module visqueux
G^* (Pa)	Module complexe
g (m.s^{-2})	Constante gravitationnelle
g_1	Fonction d'autocorrélation normalisée du champ électrique
g_2	Fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité
h	Distance entre deux particules (m) (Chapitres 1 et 2)
	Hauteur de l'empilement granulaire (m) (Chapitre 3)
	Constante de Planck (J.s) (Chapitre 4)
$\dot{h}$ (m.S^{-1})	Vitesse de rapprochement des particules

I	Moment d'inertie (N.m.s^2) (Chapitre 2)
	Intensité (A)(Chapitre 3)
	Spin nucléaire (Chapitre 4)
I_0 (A)	Intensité du rayon incident
I_t (A)	Intensité du rayon diffusé
I_v	Nombre visqueux
k (N.m^{-1})	Constante de raideur
k_n (N.m−1)	Fonction dans la loi de Hooke
k_B (J.K^{-1})	Constante de Boltzmann
$\mathbf{k_0}$	Vecteur de propagation du faisceau incident
$\mathbf{k_s}$	Vecteur de propagation du faisceau diffusé
K (kg.s^{-2})	Coefficient de friction solide
K_σ	Constante d'étalonnage de la contrainte
$K_{\dot{\gamma}}$	Constante d'étalonnage du taux de cisaillement
l (m)	Libre parcours moyen
l^* (m)	Libre parcours moyen de transport
L	Hauteur du vane (m) (Chapitre 2)
	Largeur de la cuve (m) (Chapitre 3)
Le_c	Nombre de Leighton critique
m (kg)	Masse de l'échantillon
m_f (kg)	Masse du fluide interstitiel
m_p (kg)	Masse des particules
m_{pb} (kg)	Masse de la bille en plomb
m_T (kg)	Masse totale des éléments mis en mouvement
$\mathbf{M}$ (A.m^{-1})	Aimantation magnétique
$\mathbf{M_z}$ (A.m^{-1})	Composante verticale de l'aimantation magnétique
$\mathbf{M_{xy}}$ (A.m^{-1})	Composante horizontale de l'aimantation magnétique
M_0 (A.m^{-1})	Aimantation à l'équilibre

$\mathbf{n}$	Normale à la surface
n, n'	Indice de rhéofluidification
n_L, n_S	Fraction en nombre de grosses et petites particules
N	Force normale (N)
	Nombre de collisions entre la lumière et les particules (Chapitre 3)
N_1, N_2	Première et seconde différence de contraintes normales
N_p	Nombre de particules
$\mathbf{P}$ (N)	Poids
$P(s)$	Fraction de l'intensité diffusée sur une longueur s
P_g (Pa)	Pression granulaire
P_C, P_M	Probabilité d'occupation de l'état consolidé (C) et de l'état mobile (M)
Pe_{lub}	Nombre de Péclet de lubrification
$\bar{P}e_{lub}$	Nombre de Péclet de lubrification effectif
$Pe_{\dot{\gamma}}$	Nombre de Péclet basé sur le taux de cisaillement
$\mathbf{q}$	Vecteur d'onde
r (m)	Position dans l'entrefer
r^* (m)	Position dans l'entrefer pour le calcul des constantes d'étalonnage
R (m)	Rayon des particules
R_c (m)	Rayon extérieur de la cellule de mesure
R_e (m)	Rayon extérieur de la cellule de Couette
R_i (m)	Rayon intérieur de la cellule de Couette
$Re_{\dot{\gamma}}$	Nombre de Reynolds basé sur le taux de cisaillement
Re_p	Nombre de Reynolds particulaire sous vibrations
s (m)	Chemin parcouru par le photon dans l'échantillon
t_{br} (s)	Temps de diffusion brownienne
t_c (s)	Durée d'un contact collisionnel
t_{cis} (s)	Temps caractéristique de l'écoulement de cisaillement
t_{exp} (s)	Temps caractéristique de l'expérience

t_f (s)	Durée d'un contact frictionnel
t_{cf} (s)	Temps de confinement
t_{micro} (s)	Temps microscopique
T	Température (K) (Introduction)
	Couple (Torque) (N.m) (Chapitre 2)
	Coefficient de transmission (Chapitre 3)
T_g	Température granulaire
T_i	Temps minimal entre deux images
$T_{shutter}$	Temps d'intégration de la caméra CCD
T_v	Période de vibration
TE	Temps d'écho
TR	Temps de répétition
T_1, T_2 (s)	Temps spin-réseau et temps spin-spin
U	Densité de photons par unité de volume
$\mathbf{v}$	Vitesse locale moyenne du fluide ou du matériau considéré en un point donné
$\mathbf{V}$	Vitesse du plan supérieur dans l'écoulement de cisaillement
v_f (m^3)	Volume libre d'une particule
v_p ($m.s^{-1}$)	Vitesse sous vibrations
v_{lim} ($m.s^{-1}$)	Vitesse limite de chute
v_0 (m^3)	Volume libre d'une particule au packing
v^* (m^3)	Volume libre minimal d'une particule
V_{pb} (m^3)	Volume de la bille en plomb
V_p (m^3)	Volume des particules
V_f(m^3)	Volume libre total
V_{fl}(m^3)	Volume du fluide
V_L, V_S (m^3)	Volume occupé par les grosses et petites particules
V_T (m^3)	Volume total de la suspension
V_0 (m^3)	Volume libre total au packing

W_b (m)	Largeur des chicanes
z	Position de la particule (m)(Chapitres 1,2,4)
	Distance entre le laser et la surface libre de la suspension granulaire (m) (Chapitre 3)
z_p (m)	Solution particulière
z_H (m)	Solution homogène
z_F (m)	Position finale de chute de bille

Lettres grecques

α (kg.s^{-1})	Coefficient de frottement visqueux
β	Paramètre phénoménologique dans la relation de Siegert
γ	Déformation de cisaillement
	Facteur de recouvrement (Chapitre 2)
	Rapport gyromagnétique (T^{-1}.s^{-1}) (Chapitre 4)
$\boldsymbol{\gamma}$	Tenseur des déformations
γ_c	Déformation critique
γ_o	Amplitude de la déformation sinusoïdale
$\dot{\gamma}$ (s^{-1})	Taux de cisaillement
$\dot{\boldsymbol{\gamma}}$ (s^{-1})	Tenseur des vitesses de déformation
$\dot{\gamma}_c$ (s^{-1})	Taux de cisaillement critique
Γ	Nombre d'accélération
Γ_m	Seuil de fluidisation
δ (rad)	Déphasage entre la contrainte et la déformation sinusoïdale
δ_e (m)	Écrasement lors d'un contact élastique
Δr (m)	Déplacement
δv (m.s^{-1})	Fluctuation de vitesse
ϵ (m)	Rugosité moyenne
ξ	Fraction en grosses particules
ζ (kg.s^{-1})	Facteur de frottement visqueux

η (Pa.s)	Viscosité de la suspension
η_c (Pa.s)	Viscosité de la suspension critique
η_f (Pa.s)	Viscosité du fluide interstitiel
η_r	Viscosité relative
η_s (Pa.s)	Viscosité de la suspension obtenue sur le rhéomètre à chute de bille par IRM
η_0 (Pa.s)	Viscosité au plateau de la suspension à bas cisaillement
η_H (Pa.s)	Viscosité de la suspension à haut cisaillement
η^* (Pa.s)	Viscosité complexe
$[\eta]$	Viscosité réduite
θ (rad)	Déviation angulaire
$\dot{\theta}$ (rad.s^{-1})	Vitesse de rotation angulaire
κ	Constante de torsion
λ	Rapport de tailles entre les petites et grosses particules (Chapitre 2)
	Longueur d'onde du laser (m) (Chapitre 3)
λ_M	Temps de relaxation dans le modèle de Maxwell
λ_J	Temps de retard dans le modèle de Maxwell
ρ_f (kg.m^{-3})	Masse volumique du fluide interstitiel
ρ_p (kg.m^{-3})	Masse volumique des particules
ρ_r (kg.m^{-3})	Rapport des masses volumiques
ρ_s (kg.m^{-3})	Masse volumique de la suspension
ρ_{pb} (kg.m^{-3})	Masse volumique de la bille en plomb
ρ_v (kg.m^{-3})	Masse volumique du verre
$\boldsymbol{\sigma}$ (Pa)	Tenseur des contraintes
σ (Pa)	Contrainte de cisaillement
σ_c (Pa)	Contrainte critique
σ_f (Pa)	Contrainte frictionnelle
σ_{lub} (Pa)	Contrainte de lubrification
σ_o (Pa)	Amplitude de la contrainte sinusoïdale

$\boldsymbol{\sigma}_\mathbf{n}$ (Pa)	Vecteur contrainte
σ_C (Pa)	Contribution des particules dans l'état (C) à la contrainte totale
σ_M (Pa)	Contribution des particules dans l'état (M) à la contrainte totale
σ_{MC} (Pa)	Contrainte entre les particules dans l'état (C) et dans l'état (M)
σ_v (Pa)	Contrainte de vibration
μ	Coefficient de friction
μ (A.m^2)	Moment magnétique
ν (Hz)	Fréquence de Fourier
ν_0 (Hz)	Fréquence de Larmor
$\boldsymbol{\tau}$ (Pa)	Tenseur des contraintes visqueuses
τ_R (s)	Temps de relaxation
τ_D (s)	Temps de décorrélation aux temps longs par MSDWS
τ_{DWS} (s)	Temps de décorrélation aux temps courts par DWS
p (Pa)	Pression
ϕ	Fraction volumique
	Phase entre la source et le détecteur (Chapitre 3)
$\Delta\phi$	Décalage de phase
ϕ_c	Fraction volumique d'entassement minimal
ϕ_g	Fraction volumique globale
ϕ_m ou ϕ^*	Fraction volumique d'entassement maximal
ϕ_L, ϕ_S	Fraction volumique en grosses et petites particules
ϕ_{rcp}	Fraction volumique d'entassement maximal pour un empilement aléatoire
ϕ_{rlp}	Fraction volumique d'entassement minimal pour un empilement aléatoire
ψ_1, ψ_2	Premier et second coefficient de contraintes normales
ω (rad.s^{-1})	Fréquence angulaire
ω_{CM} (s^{-1})	Fréquence de transition de l'état (M) vers l'état (C)
ω_{MC} (s^{-1})	Fréquence de transition de l'état (C) vers l'état (M)

Introduction

Que ce soit dans la nature, dans les procédés industriels ou encore dans notre vie quotidienne, de nombreux phénomènes mettent en jeu des grains immergés dans un liquide. Pourtant, la physique de ces milieux est loin d'être comprise et continue de faire l'objet d'une recherche fondamentale. Remontons dans notre enfance pour se souvenir que la construction d'un château de sable n'était pas si évidente que cela puisse paraître (Fig.1). La quantité d'eau doit être telle que les grains doivent rester collés entre eux tout en maintenant l'édifice stable. Ce n'est que récemment que la recette parfaite du château de sable fut élucidée. Derrière une simplicité apparente, cet exemple montre la complexité des forces dans un milieu granulaire.

FIGURE 1 – Château de sable (Photographie Philibus/Fotolia.com).

La nécessité de comprendre le comportement de milieux granulaires mouillés va bien évidemment au delà de la construction de structures artistiques. Par exemple, le béton, matériau de construction le plus utilisé au monde, est au cœur de nombreuses recherches. Sa composition, faite de ciment, d'eau, de granulats et bien souvent d'adjuvants, influence grandement les caractéristiques du produit final (durabilité, mise en œuvre...). Il est donc essentiel de maitriser les propriétés de ces matériaux pour pouvoir élaborer des bétons appropriés aux besoins des utilisateurs. De manière plus générale, les matériaux granulaires mouillés sont impliqués dans de nombreux secteurs industriels et leurs propriétés physiques et mécaniques peuvent être source de problèmes durant des opérations de stockage, de transport ou de mélange. Durant ces procédés, ces matériaux sont souvent soumis à des vibrations

et il est donc crucial de pouvoir comprendre l'influence de cette sollicitation. Dans ce contexte, nous proposons une étude fondamentale sur la compréhension du comportement de suspensions granulaires, constituées de grains complètement immergés dans un liquide, soumises à des vibrations.

Qu'est ce qu'une suspension granulaire ?

On appelle suspension granulaire un matériau composé d'une forte concentration de particules solides immergées dans un liquide. Leur comportement est à la frontière entre celui des suspensions classiques de sphères dures et celui des matériaux granulaires secs. Les grains peuvent être de forme et de matière diverse. D'un point de vue physique, la taille des grains est supérieure à la dizaine de micromètres, ce qui permet de limiter les interactions entre particules : les grains sont non browniens [1] et ils interagissent par contact. Par conséquent, les grains restent en mouvement seulement si on leur injecte de l'énergie en continu, énergie en provenance de forces extérieures telles que la gravité ou les vibrations par exemple. Selon l'intensité de cette énergie, un même matériau granulaire peut se comporter comme un solide, un liquide ou un gaz. Par exemple, un sol supportant des bâtiments a un aspect solide alors que ce même sol sous l'effet d'un tremblement de terre, donc des vibrations, peut devenir liquide. Il peut même y avoir la présence des trois états de la matière dans une même configuration (Fig.2). Dans le cadre de notre étude, les grains sont totalement immergés dans le liquide, les forces capillaires qui sont présentes dans l'exemple du château de sable sont donc négligeables dans notre cas.

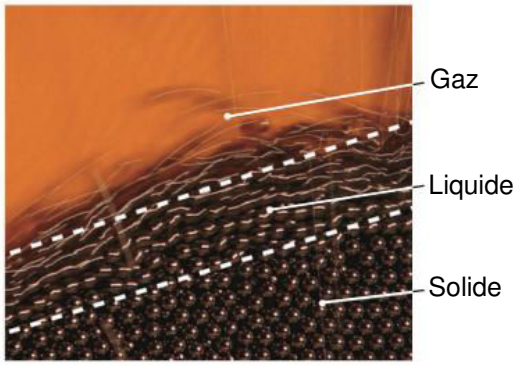


FIGURE 2 – Écoulement de billes d'acier sur un tas. D'après Forterre et Pouliquen [1].

1. Pour des billes de verre sphériques de diamètre $d = 100$ μm et de masse volumique $\rho_p = 2400$ kg.m^{-3}, l'énergie thermique brownienne $E_{th} = k_B T \approx 10^{-21}$ J est très inférieure à l'énergie potentielle de pesanteur $E_p = \rho_p V_p g d \approx 10^{-8}$ J avec V_p le volume de la particule, g la constante gravitationnelle.

Pourquoi étudier les suspensions granulaires sous vibrations ?

L'étude des suspensions granulaires sous vibrations concerne plusieurs enjeux qui sont environnementaux, industriels et fondamentaux. Les suspensions granulaires sont impliquées dans de nombreuses applications géophysiques puisque le sol est constitué principalement de grains et d'eau. Sous l'effet des vibrations provoquées par un séisme par exemple, le sol qui a un aspect solide au repos va se liquéfier et provoquer des glissements de terrain. Il est donc important de pourvoir prévenir ce type de catastrophe naturelle. Il existe d'autres exemples de phénomènes spectaculaires mettant en jeu la matière en grains, comme par exemple les éruptions de laves volcaniques, les éboulis ou les écoulements de débris (Fig.3).

FIGURE 3 – a) Liquéfaction du sol lors du séisme de 1964 au Japon (Photographie de Magnus Manske). b) Coulée pyroclastique issue d'un volcan aux Philippines en 1984 (Photographie C. G. Newhall, USGS, DP). c) Coulée de débris en Indonésie en 2002 (Photographie de Franck Lavigne).

Les suspensions granulaires sont également omniprésentes dans de nombreux secteurs industriels. On peut citer l'industrie du bâtiment et du génie civil (béton, enrobés bitumineux), l'industrie pharmaceutique, l'industrie du papier (pâte à papier) ou encore l'industrie agroalimentaire. Dans tous ces secteurs, les suspensions granulaires sont soumises à des vibrations lors d'opération de stockage, de transport, de mélange ou de transformation. Face à ces problèmes, les industriels ont parfois trouvé des solutions astucieuses mais bien souvent empiriques. L'une des motivations de notre étude est donc liée à l'optimisation de ces procédés industriels. L'application de vibrations peut être un moyen efficace de caractérisation de systèmes complexes dans une optique d'optimisation en génie des procédés. Par exemple, le transport du minerai de nickel par voie maritime en Nouvelle Calédonie est loin d'être exempt de complications. Le minerai de nickel, d'aspect solide à l'état de repos, peut devenir liquide sous l'effet des vibrations provoquées par le moteur du bateau. Ce passage solide-liquide peut provoquer des effets de « carène liquide » entrainant un déplacement du centre de gravité du navire (Fig.4). Si le déplacement est trop important, le navire peut chavirer. Il est donc important de pouvoir quantifier et par la suite prédire l'effet des vibrations sur le minerai de nickel.

FIGURE 4 – a) Minerai de Nickel en Nouvelle Calédonie (Photographie de Martial Dosdane). b) Liquéfaction du minerai de Nickel (Photographie UK P&I Club). c) Chavirement d'un cargo de minerai de nickel dans la mer de Chine en 2013 (Photographie HKG Flying Service).

Comme évoqué auparavant, les suspensions granulaires sont des milieux complexes dont la compréhension du comportement est encore loin d'être acquise. Plusieurs raisons sont à l'origine de cette difficulté comme par exemple l'absence d'agitation thermique, la complexité des interactions intergranulaires ainsi que la variété de comportements sous sollicitation.

Problématique de la thèse

L'approche adoptée pour comprendre le comportement des suspensions granulaires soumises à des vibrations est une approche rhéophysique qui consiste à relier le comportement macroscopique à la microstructure du matériau. Tout au long de ce manuscrit, la problématique à laquelle nous avons tenté de répondre peut être formulée de la façon suivante : quelle est l'influence des vibrations, du fluide interstitiel et de la taille des billes sur le comportement rhéologique d'une suspension granulaire et peut-on l'expliquer par sa dynamique à l'échelle du grain ? Nous nous limiterons à l'étude d'une suspension granulaire modèle composée de billes de verre sphériques immergées dans un fluide newtonien en concentration dense.

Pour répondre à cette question, le manuscrit sera divisé en 4 chapitres :

- Le premier chapitre est une revue bibliographique présentant une synthèse des travaux réalisés sur les suspensions granulaires, ce qui nous permettra d'aborder les objectifs de la thèse.
- Le second chapitre est dédié au comportement rhéologique macroscopique de la suspensions granulaire et à la modélisation de ce comportement. Nous présentons le rhéomètre à poudre ainsi que les matériaux modèles utilisés. Nous proposons également une ouverture du sujet sur l'influence de la polydispersité en effectuant des expériences de rhéométrie sur des suspensions bidisperses.
- Le troisième chapitre est consacré à l'étude de la dynamique à l'échelle du grain dans le but

de relier la loi de comportement observée à l'échelle macroscopique aux mécanismes présents à l'échelle microscopique. Pour ce faire, nous avons eu recours à la spectroscopie mécanique et à la diffusion de lumière en lumière cohérente dite multi-speckle (MSDWS). Ces deux techniques permettent de remonter au temps caractéristique de réorganisation des particules aux temps longs. Nous avons également réalisé des expériences de diffusion de lumière en diffusion multiple (DWS) pour accéder à la dynamique du système aux temps courts.

– Le quatrième chapitre est une ouverture orientée vers l'utilisation des grands instruments. Nous proposons de réaliser un rhéométe à chute de bille en utilisant l'Imagerie par Résonance Magnétique (IRM). L'expérience consiste à suivre le déplacement d'une grosse bille dans une suspension granulaire. L'analyse de son mouvement permet de sonder la viscosité du système, à l'instar d'un viscosimètre à chute de bille. Les premiers résultats étant très encourageants, d'autres expériences pourront être effectuées à l'avenir.

Chapitre 1

Généralités

Sommaire

1.1 Notions de rhéologie 16

1.1.1 Contraintes et déformations dans un fluide 16

1.1.2 Fonctions matérielles 18

1.2 Les suspensions granulaires 20

1.2.1 Définitions et enjeux 20

1.2.2 Interactions 25

1.2.3 Mesures rhéologiques - Loi de comportement 29

1.2.4 Difficultés d'une mesure rhéologique classique 35

1.3 Modélisation théorique de la viscosité des suspensions granulaires sous cisaillement 36

1.3.1 Analyse dimensionnelle - Variables pertinentes 36

1.3.2 Relation viscosité-fraction volumique 39

1.4 Comportement sous vibrations de milieux granulaires 41

1.4.1 Influence des vibrations sur le comportement des milieux granulaires secs . . . 41

1.4.2 Influence des vibrations sur le comportement des suspensions granulaires . . . 45

1.5 Objectifs de la thèse 46

Ce premier chapitre bibliographique est destiné à donner un aperçu des connaissances acquises sur le comportement des suspensions granulaires afin d'introduire les grandeurs et les concepts utiles à la bonne compréhension du manuscrit.

Dans un premier temps, il nous a semblé utile de redéfinir les grandeurs rhéologiques utilisées dans ce manuscrit, telles que la contrainte de cisaillement, le taux de cisaillement, la viscosité, le module

élastique et le module visqueux. La chapitre est par la suite orienté vers un bilan non exhaustif des différents travaux de la littérature portant sur les suspensions granulaires. Ces matériaux possèdent des propriétés physiques et mécaniques bien particulières, pouvant être à l'origine de comportements complexes. Différentes modélisations de ces comportements existent et nous proposons de présenter celles qui nous seront utiles par la suite. Nous terminerons ce chapitre par les travaux réalisés sur l'influence des vibrations sur les milieux granulaires secs ou saturés, nous permettant ainsi de situer notre étude dans son contexte bibliographique.

1.1 Notions de rhéologie

Dans cette section, nous proposons d'introduire brièvement les notions de base en rhéologie et les principales grandeurs utilisées tout au long de ce manuscrit. Ces éléments sont présentés dans de nombreux ouvrages généraux [2, 3, 4, 5]. La « rhéologie »(du grec *rheo*, couler et *logos*, étude), terme inventé par Eugène Bingham et Marcus Reiner en 1929, est une discipline qui traite l'étude de la déformation et de l'écoulement de la matière. La caractérisation rhéologique d'un matériau consiste à établir des relations entre les contraintes imposées et les déformations qui en résultent via des fonctions matérielles, qui sont par exemple la viscosité, le module élastique ou le module visqueux.

Dans le texte, les vecteurs seront notés en gras, les tenseurs en italique gras et les scalaires en italique.

1.1.1 Contraintes et déformations dans un fluide

Contraintes

En plus des forces de volume (gravité par exemple), un élément de fluide est soumis à des forces de surface. Considérons un élément de surface d'aire dS et de normale $\mathbf{n}$ dans un fluide (Fig.1.1(a)). La force de surface s'écrit $\mathrm{d}\mathbf{F} = \boldsymbol{\sigma}_\mathbf{n}\mathrm{d}S$ avec $\boldsymbol{\sigma}_\mathbf{n}$ le vecteur contrainte défini par $\boldsymbol{\sigma}_\mathbf{n} = \boldsymbol{\sigma}.\mathbf{n}$ avec $\boldsymbol{\sigma}$ (ou σ_{ij}) le tenseur des contraintes. Par convention, dans la notation σ_{ij}, i représente la direction de la contrainte et j celle de la normale à la surface d'application de la force (Fig.1.1(b)). Les termes diagonaux sont les contraintes normales et les termes non diagonaux sont les contraintes tangentielles. Pour un fluide au repos, les forces de surface s'identifient à la pression et sont normales à dS, d'où $\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{I}$ avec p la pression et $\boldsymbol{I}$ la matrice identité. Pour un fluide en mouvement, des forces de frottement liées au mouvement relatif des particules fluides apparaissent avec une composante normale et tangentielle.

Le tenseur des contraintes se décompose alors en deux parties, une partie liée à la pression isotrope ($-p\boldsymbol{I}$) et une partie anisotrope appelée tenseur des contraintes visqueuses ($\boldsymbol{\tau}$) tel que $\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{I} + \boldsymbol{\tau}$, ce qui donne explicitement dans un repère (x_1, x_2, x_3) :

$$\boldsymbol{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{31} & \sigma_{32} & \sigma_{33} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tau_{11} - p & \tau_{12} & \tau_{13} \\ \tau_{21} & \tau_{22} - p & \tau_{23} \\ \tau_{31} & \tau_{32} & \tau_{33} - p \end{pmatrix} \tag{1.1}$$

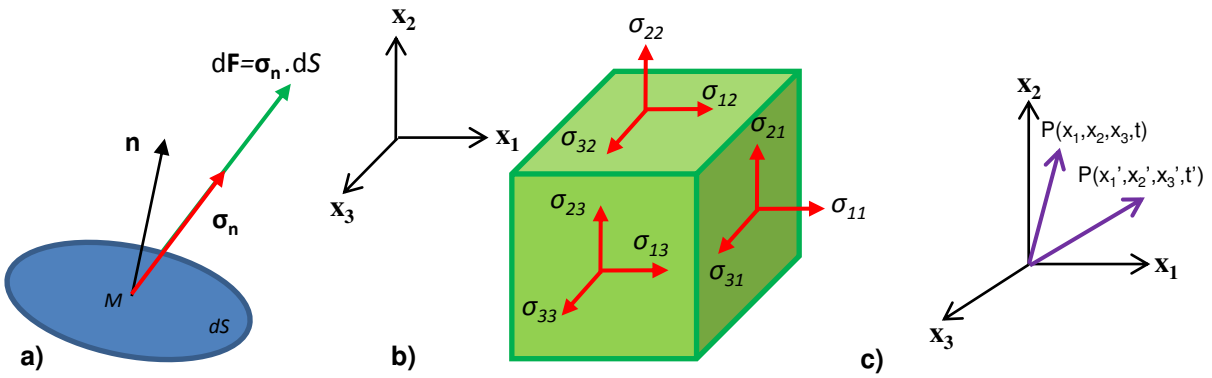


FIGURE 1.1 – a) Force **dF** s'exerçant sur une surface dS dont la normale **n** est orientée de façon quelconque. b) Indices des composantes du tenseur des contraintes dans un repère orthonormé. c) Déformation.

Déformations

Sous l'action d'une sollicitation, chaque particule fluide va se déplacer. Chaque déplacement étant à priori différent pour chacun des points, le milieu va se déformer. Considérons une particule fluide située en (x_1, x_2, x_3) à l'instant t. A l'instant t', cette particule se situe en (x'_1, x'_2, x'_3) tel que $x_1 = x_1(x'_1, x'_2, x'_3, t)$, $x_2 = x_2(x'_1, x'_2, x'_3, t')$ et $x_3 = x_3(x'_1, x'_2, x'_3, t')$ (Fig.1.1(c)). On définit le tenseur des gradients de déplacement $\boldsymbol{E}$ par $E_{ij} = \frac{\partial x_i}{\partial x'_i}$ avec $i = 1, 2, 3$ et le tenseur des déformations $\boldsymbol{\gamma}$ par $\boldsymbol{\gamma} = \boldsymbol{E}.\boldsymbol{E}^t - \boldsymbol{I}$. Ce dernier est symétrique et il permet de décrire l'état de déformation local du matériau, en s'affranchissant des mouvements de rotation et de translation de l'ensemble.

On peut également raisonner par rapport à la vitesse des particules fluide. Le tenseur des taux de déformations ou le tenseur des gradients de vitesses $\boldsymbol{D}$ est défini par $D_{ij} = \frac{\partial v_i}{\partial x_j}$ avec v_i la composante de la vitesse de la particule dans la direction i. Le tenseur des vitesses de déformation $\dot{\boldsymbol{\gamma}}$ est quant à lui relié à $\boldsymbol{D}$ par :

$$\dot{\boldsymbol{\gamma}} = \boldsymbol{D} + \boldsymbol{D}^t = \boldsymbol{\nabla}\mathbf{v} + (\boldsymbol{\nabla}\mathbf{v})^t \tag{1.2}$$

Comme son prédécesseur $\boldsymbol{\gamma}$, le tenseur $\dot{\boldsymbol{\gamma}}$ est symétrique et ne prend en compte que la déformation du système.

1.1.2 Fonctions matérielles

Types d'écoulement : le cisaillement simple, l'élongation uniaxiale

La caractérisation rhéologique d'un matériau consiste à déterminer sa loi de comportement, autrement dit à établir la relation entre les composantes du tenseur des contraintes σ_{ij} et celles du tenseur des vitesses de déformation $\dot{\gamma}_{ij}$. On peut distinguer deux types d'écoulement : l'écoulement élongationnel (Fig.1.2(a)) et l'écoulement de cisaillement (Fig.1.2(b)).

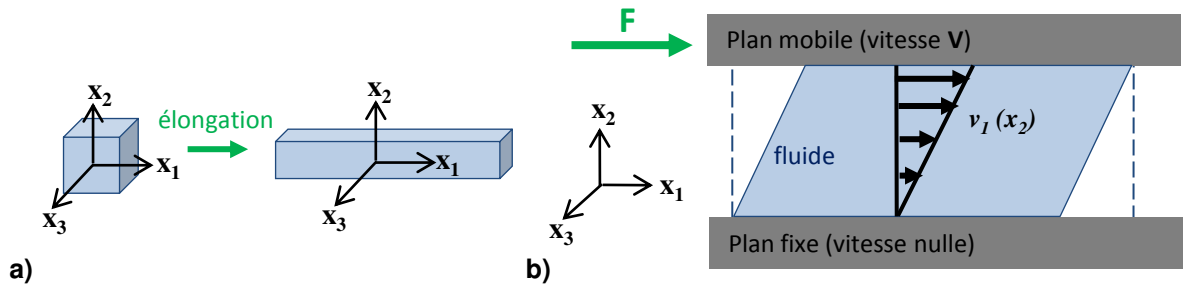


FIGURE 1.2 – a) Écoulement élongationnel uniaxial dans la direction x_1. b) Écoulement de cisaillement simple entre deux plans infinis.

Dans le cas d'un écoulement élongationnel uniaxial (Fig.1.2(a)), les éléments de fluide sont étirés dans une direction privilégiée (ici $\mathbf{x_1}$) sans cisaillement ni rotation. Pour les matériaux granulaires, on rencontre cette situation dans le cas du sablier par exemple. Ce type d'expérience permet de définir la viscosité élongationnelle du matériau. N'ayant pas été utilisé dans ce manuscrit, on ne développera pas plus en détails cet écoulement.

Concentrons nous désormais sur l'écoulement de cisaillement (Fig.1.2(b)). Les matériaux granulaires présentent une résistance à l'écoulement lorsqu'ils sont cisaillés. En rhéométrie, on utilise généralement un écoulement de cisaillement simple. Dans l'exemple de la figure 1.2(b), un fluide est enfermé entre deux plans parallèles infinis. Le plan inférieur est fixe et le plan supérieur se déplace à la vitesse $\mathbf{V}$ sous l'effet d'une force tangentielle $\mathbf{F}$. Dans ces conditions, le champ de vitesse s'écrit $v_1 = \dot{\gamma} x_2$, $v_2 = v_3 = 0$ avec $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_{12} = \partial v_1 / \partial x_2$ le taux de cisaillement (Eq.(1.2)). Le rapport de la contrainte de cisaillement $\sigma_{12} = \sigma$ et du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ permet de définir la viscosité de cisaillement η telle

que :

$$\eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} = \eta(\dot{\gamma}) \tag{1.3}$$

Pour un fluide newtonien, comme l'eau ou l'huile par exemple, la viscosité η est constante et on retrouve la loi de Newton (la contrainte est proportionnelle au taux de cisaillement). Pour un fluide non newtonien, la viscosité dépend du taux de cisaillement.

L'écoulement de cisaillement permet de définir d'autres fonctions matérielles, comme les différences de contraintes normales N_1 et N_2 définies par :

$$N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22} = \psi_1 \dot{\gamma}^2 \qquad \text{et} \qquad N_2 = \sigma_{22} - \sigma_{33} = \psi_2 \dot{\gamma}^2 \tag{1.4}$$

Avec ψ_1 et ψ_2 le premier et le deuxième coefficient de contraintes normales. Pour un fluide newtonien, N_1 et N_2 sont nulles.

Régimes d'écoulement : stationnaire, transitoire, oscillatoire

Le régime est dit stationnaire lorsque la contrainte, le taux de cisaillement et les fonctions matérielles ne dépendent pas du temps.

On distingue plusieurs types de sollicitations instationnaires : le régime oscillatoire, la relaxation de contrainte, le fluage, les cycles d'hystérésis. Dans ce manuscrit, nous avons surtout utilisé le régime oscillatoire. L'expérience consiste à appliquer une contrainte sinusoïdale à l'échantillon. Dans l'exemple de la figure 1.3(a), un fluide est confiné entre deux plans parallèles infinis. Le plan inférieur est fixe et le plan supérieur est animé d'un mouvement oscillatoire sous l'effet d'une force $\mathbf{F}$. En notation complexe, la contrainte est définie par $\sigma_{12}^* = \sigma_0 \exp(\mathrm{i}\omega t)$ avec σ_0 l'amplitude de la contrainte et ω la fréquence angulaire. La déformation s'écrit $\gamma_{12}^* = \gamma_0 \exp(\mathrm{i}\omega t - \delta)$ avec γ_0 l'amplitude de la déformation et δ le déphasage (Fig.1.3(b)). Le taux de cisaillement est quant à lui donné par $\dot{\gamma}_{12}^* = \mathrm{i}\gamma_0\omega \exp(\mathrm{i}\omega t - \delta)$. On définit ainsi deux fonctions matérielles : le module complexe G^* et la viscosité complexe η^* telles que :

$$G^* = \frac{\sigma^*}{\gamma^*} = \frac{\sigma_0}{\gamma_0}\exp(\mathrm{i}\delta) = \frac{\sigma_0}{\gamma_0}(\cos\delta + \mathrm{i}\sin\delta) = G' + \mathrm{i}G'' \tag{1.5}$$

$$\eta^* = \frac{\sigma^*}{\dot{\gamma}^*} = \frac{G^*}{\mathrm{i}\omega} = \eta' - \mathrm{i}\eta'' \tag{1.6}$$

Avec $G' = \frac{\sigma_0}{\gamma_0}\cos\delta$, le module élastique et $G'' = \frac{\sigma_0}{\gamma_0}\sin\delta$, le module visqueux, $\eta' = \frac{G''}{\omega}$ et $\eta'' = \frac{G'}{\omega}$.

Un balayage en contrainte consiste à fixer la fréquence angulaire ω et à faire varier l'amplitude de la contrainte σ_0. Un balayage en fréquence (ou spectroscopie mécanique) consiste à fixer σ_0 (généralement faible pour être dans le domaine de viscoélasticité linéaire) et à faire varier ω. Dans le cas de très faibles déformations, la structure du matériau au repos n'est pas modifiée et sa réponse à cette sollicitation nous permet d'obtenir des informations sur ses propriétés mécaniques dans son état d'équilibre.

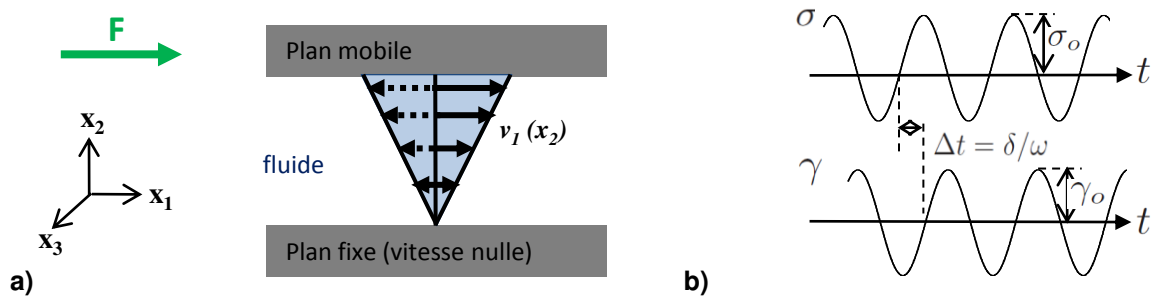


FIGURE 1.3 – a) Oscillations appliquées à un fluide situé entre deux plans infinis. b) Contrainte et déformation en régime oscillatoire.

Dans la suite du manuscrit, nous désignerons par $\sigma = \sigma_{12}$ la contrainte de cisaillement et par $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_{12}$ le taux de cisaillement.

1.2 Les suspensions granulaires

Les suspensions granulaires présentent une variété de comportements non newtoniens dont la caractérisation est loin d'être maitrisée. Cette complexité réside dans l'existence d'une variété d'interactions (frictionnelle, lubrifiée, collisionnelle) qui s'additionnent aux propriétés physiques des particules en présence (fraction volumique, coefficient de friction) [6, 7, 8]. Dans cette section, nous nous intéressons aux travaux réalisés sur le comportement rhéologique en écoulement de ces matériaux. Après avoir défini de façon plus précise une suspension granulaire, nous présentons les interactions de contact prédominantes ainsi que les différents comportements que nous évoquons depuis le début de ce chapitre.

1.2.1 Définitions et enjeux

Définition et exemples

Une suspension granulaire est un mélange d'inclusions solides non browniennes de taille typiquement supérieure à la dizaine de micromètres immergées dans un liquide, au sein duquel les contacts entre particules jouent un rôle primordial dans le comportement du système [9]. L'existence de ces

contacts requiert une certaine concentration en particules, exprimée en termes de fraction volumique. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés au cas de suspensions en très forte concentration, appelées aussi pâtes granulaires dans la littérature. Mais que signifie forte concentration ? Comment s'organisent les grains dans le milieu ? De quelle nature sont les interactions inter-granulaires ?

Ces suspensions sont rencontrées communément dans la nature (transport de sédiment en rivière, boues, liquéfaction des sols), dans les industries agroalimentaires, du bâtiment (bétons, enrobés bitumineux, ciments), ou encore pharmaceutiques ou cosmétiques (crèmes exfoliantes ou gommantes) (Fig.1.4) et présentent différents comportements non newtoniens, tels que des comportements rhéofluidifiants, rhéoépaississants, la présence d'une contrainte seuil ou encore des contraintes normales. Sous cisaillement, ces milieux présentent des hétérogénéités dans leur structure dues à la localisation de l'écoulement et à la migration des particules, ce qui induit des difficultés de mesures expérimentales.

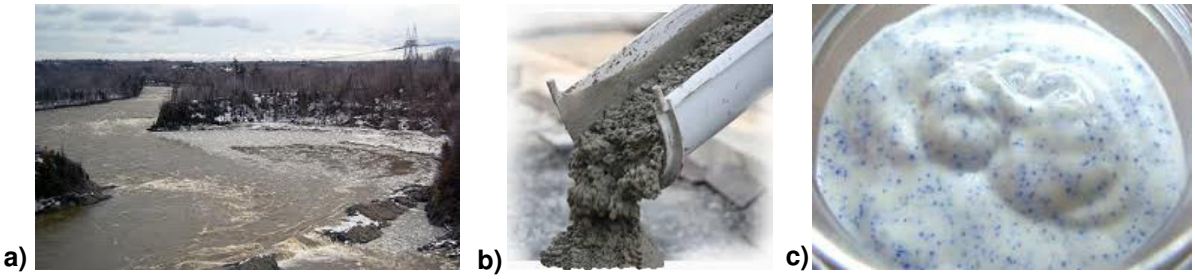


FIGURE 1.4 – a) Transport de sédiment en rivière. b) Béton. c) Crème cosmétique gommante.

Fraction volumique

Un paramètre incontournable qui caractérise un empilement granulaire est la fraction volumique en particules ϕ. Sa valeur dépend de la disposition spatiale adoptée par les grains et par conséquent de la manière dont a été préparée la suspension granulaire. Sous sollicitation, cisaillement ou vibrations par exemple, on peut faire évoluer la configuration des grains d'un état à un autre, et donc modifier la valeur initiale de ϕ. Il est donc crucial de connaitre sa valeur puisqu'elle influe sur le comportement rhéologique. Néanmoins, il est difficile de connaitre l'évolution de la fraction volumique en fonction des caractéristiques de l'écoulement. Cette fraction (ou concentration) volumique solide ϕ s'exprime comme le rapport du volume occupé par les grains sur le volume total occupé par l'empilement, défini par la hauteur de sa surface libre. On peut distinguer deux valeurs limites pour ϕ, notées ϕ_c et ϕ_m, correspondant respectivement à l'empilement le plus lâche possible mécaniquement stable et à l'empilement le plus compact possible (Fig.1.5). On considère par la suite des grains sphériques et

monodisperses.

Que vaut ϕ_c ? Dans le cas d'un empilement aléatoire, l'empilement le plus lâche (« random loose packing » en anglais) qu'il est possible de réaliser est obtenu pour $\phi_c = \phi_{rlp} \approx 0.56$, valeur obtenue par simulation numérique [10]. En comparaison, dans le cas d'un empilement ordonné, la structure cristalline la plus lâche possible est celle d'un réseau cubique simple donnant lieu à $\phi_c = \pi/6 = 0.52$.

Que vaut la valeur extrême ϕ_m ? La fraction volumique d'entassement maximal ϕ_m correspond au maximum de particules solides que l'on peut placer dans un volume de fluide. La valeur la plus élevée pour ϕ_m correspond à un arrangement cristallin compact des grains du type cubique à faces centrées ou hexagonal compact, tel que $\phi_m = 0.74$ [11]. Cette configuration ne peut être obtenue qu'en plaçant les billes une à une dans l'empilement. Dans le cas d'un empilement aléatoire, l'empilement le plus compact possible (« random close packing » en anglais) possède une fraction volumique $\phi_m = \phi_{rcp} \approx 0.64$ [12]. Les valeurs obtenues pour les empilements aléatoires, que ce soit ϕ_{rlp} ou ϕ_{rcp}, ne peuvent être déterminées exactement et dépendent de la dynamique du système.

Nous pouvons désormais préciser la définition de suspension granulaire. On parle de suspension granulaire quand la fraction volumique en particules est comprise entre ϕ_c et ϕ_m (Fig.1.5) [8]. Les suspensions granulaires que nous étudierons par la suite seront réalisées avec une fraction volumique proche de ϕ_m (≈ 0.61) (Fig.1.5). Ces systèmes, qualifiés également de pâtes granulaires, sont des fluides coincés qui ne deviennent liquides que si ils sont soumis à une énergie suffisante, sous l'effet du cisaillement ou des vibrations par exemple. A l'état de repos, la suspension granulaire étudiée aura donc un aspect solide.

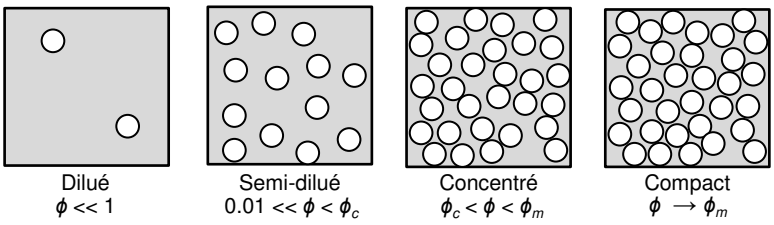


FIGURE 1.5 – Définition des régimes de concentration. D'après Coussot [9].

Réseau de particules en contact

Dans une suspension granulaire, les grains interagissent par contacts, directs ou indirects. Au cours d'un écoulement, ces contacts vont évoluer et cette dynamique des contacts va influer sur le

comportement rhéologique du système. Cependant, connaître la répartition des forces dans les empilements granulaires est loin d'être une tâche triviale et fait l'objet de nombreux travaux de recherche [13, 14, 15]. La figure 1.6 montre des images du réseau de forces obtenues par simulation numérique (a) et par photoélasticimétrie (b). Ces deux images montrent clairement une répartition hétérogène des forces de contact au sein du milieu granulaire. En effet, il existe des chemins privilégiés (en trait noir épais sur la figure (a), en blanc sur la figure (b)) et des branches secondaires. Les travaux de la littérature distinguent le réseau de contacts en deux sous-réseaux. Le réseau de contacts « fort » est constitué de particules dites « compétentes », capables de transférer des contraintes supérieures à la contrainte moyenne [8]. Elles supportent la plus grande partie des efforts. Le réseau de contacts « faible » quant à lui est constitué de particules dites « fragiles », qui transportent les contraintes inférieures à la contrainte moyenne [8]. Pour de grandes déformations, le réseau de contacts subit d'importantes modifications : les chaines principales disparaissent pour laisser place aux chainons secondaires qui transmettent les forces de façon diffuse mais homogène.

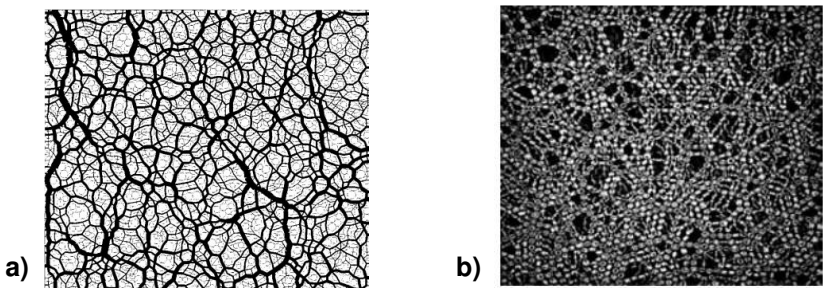


FIGURE 1.6 – Réseau de forces déterminé a) par simulation numérique dans le cas d'une compression biaxiale d'un échantillon de 4000 particules. D'après Radjai *et al.* [14]. b) expérimentalement par photoélasticimétrie pour une compression biaxiale de disques. D'après Majmudar et Behringer [15].

Enjeux théoriques

L'existence d'un réseau de contacts dans une suspension granulaire lui confère des propriétés dynamiques particulières. Celui-ci évolue en fonction des contraintes extérieures appliquées (cisaillement ou vibrations) (Fig.1.7) et fait passer la suspension d'un comportement solide à un comportement liquide. Cette transition, nommée « transition de jamming »décrit le déblocage/blocage de la suspension lorsque les contraintes appliquées augmentent/diminuent. Les phénomènes et mécanismes qui apparaissent lors de cette transition sont loin d'être compris. Plusieurs raisons sont à l'origine de cet difficulté comme par exemple l'absence d'agitation thermique, la complexité des interactions inter-

granulaires ainsi que la variété de comportements sous sollicitation. Cette transition de « jamming »est une propriété partagée par d'autres systèmes comme les mousses, les émulsions ou les systèmes vitreux (verres de spins). Tous ces systèmes ont une particularité commune : leur dynamique sous sollicitation est hors équilibre. Cette similarité de comportement a été mise en évidence par Liu et Nagel [16] qui ont établi un diagramme de phase (Fig.1.8) où la phase bloquée correspond aux faibles valeurs de température et de contrainte et aux grandes valeurs de densité.

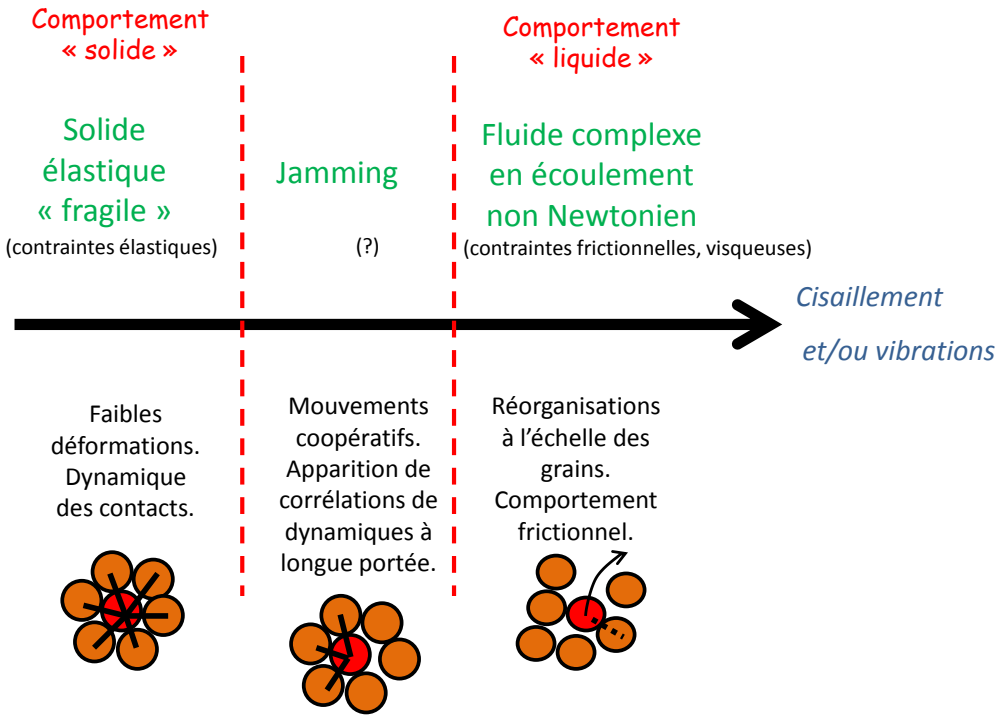


FIGURE 1.7 – Propriétés des suspensions granulaires en fonction du cisaillement et/ou des vibrations appliqués au système.

En dehors de cet espace, le système est débloqué. A priori, les suspensions granulaires se situent dans le plan des températures nulles, i.e. dans le plan « contrainte-densité ». Dans ce diagramme, la température qui est une variable d'agitation peut être remplacée par les vibrations, même si il n'a pas été clairement établi que la source de vibrations était équivalente à une température au sens thermodynamique. Les suspensions granulaires vibrées peuvent donc être vues comme des milieux modèles hors équilibre et on peut se demander dans quelle mesure les résultats que nous montrerons ici ne seraient pas applicables aux autres systèmes de ce diagramme de phase.

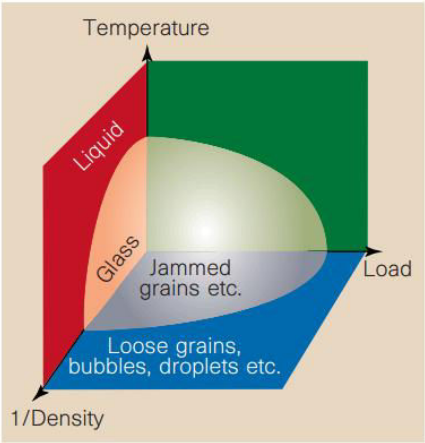


FIGURE 1.8 – Diagramme de phase proposé par Liu et Nagel [16]. La région située à basse température, basse contrainte et haute densité correspond au régime bloqué des systèmes.

1.2.2 Interactions

Les particules qui constituent les suspensions granulaires étudiées ici sont suffisamment grosses (supérieures à la dizaine de micromètres) pour ne pas être tributaires de l'agitation thermique brownienne. Elle ne tendent pas non plus à se rapprocher ou à s'agréger sous l'effet des forces attractives de Van der Waals ni à se repousser sous l'effet des forces électrostatiques dues à la présence d'ions à la surface des particules. Les suspensions que nous considérons sont constituées de grains complètement immergés dans le liquide, ce qui permet de négliger les forces capillaires. Les grains interagissent principalement par des interactions de contact direct de type frictionnelle ou collisionnelle ou des interactions de contact indirect de type lubrifiée.

1.2.2.1 Contacts élastiques

A faible déformation, une suspension granulaire présente un comportement élastique. La force de répulsion entre deux grains est alors donnée par la loi de Hertz : $F_{Hertz} \sim E\sqrt{R}\delta_e^{3/2}$ avec E le module d'Young, R le rayon des particules et δ_e l'écrasement qui contrôle la dynamique du réseau de contact (Fig.1.9). Aux très faibles déformations, la force de répulsion tend vers la loi de Hooke $F_{Hooke} \sim k_n\delta_e$ avec k_n une fonction du rayon des grains et du module d'Young.

1.2.2.2 Contacts frictionnels

On parle de contact frictionnel lorsque le contact est maintenu entre les surfaces de deux particules en mouvement relatif l'une par rapport à l'autre. Ce contact s'effectue lorsque la distance qui sépare

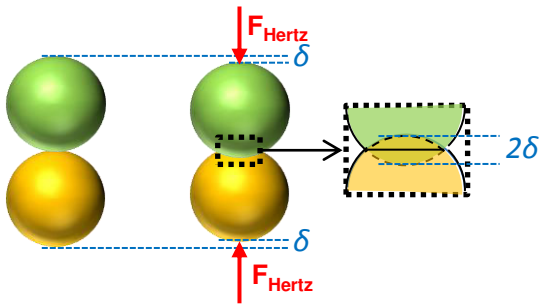


FIGURE 1.9 – Contact élastique de Hertz entre deux sphères.

les deux grains sont de l'ordre de leur rugosité. Leur surface rentre alors en contact en quelques points (Fig.1.10(a)). Les phénomènes mis en jeu à l'échelle microscopique étant extrêmement complexes (tortuosité des surfaces en contact, présence de film interstitiel ...), on s'intéresse uniquement à ce qui se passe à l'échelle macroscopique. Il s'avère alors que les contacts frictionnels peuvent être modélisés par les lois d'Amontons Coulomb, qui s'énoncent comme suit (Fig.1.10(b)) : lorsque deux corps glissent l'un sur l'autre, la norme de la force de frottement F_f est proportionnelle à la norme de la force normale N qui s'exerce entre les deux corps, elle est indépendante de l'aire apparente de contact, de la vitesse de déplacement relatif des objets en contact, et ne dépend que de la nature des matériaux en présence. On a alors :

$$F_f = \mu N \tag{1.7}$$

Avec μ le coefficient de friction, typiquement compris entre 0.1 et 1.

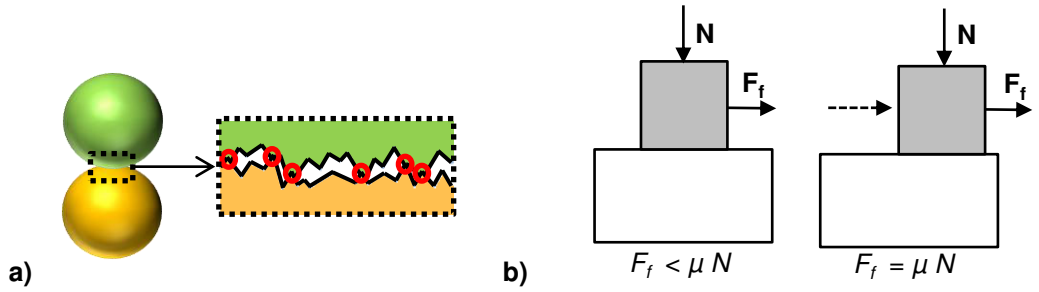


FIGURE 1.10 – a) Zoom sur un contact entre deux particules rugueuses. Le contact est réalisé au niveau des aspérités de surface (cercles rouges). b) Lois d'Amontons Coulomb pour le frottement entre deux surfaces solides. Pour qu'il y ait mouvement relatif, la force tangentielle F_f doit être égale à μN avec μ le coefficient de friction et N la force normale. D'après Coussot [9].

Les contacts frictionnels entre grains permettent de distribuer la force de pesanteur le long du réseau de particules en contact. La contrainte supportée par ce réseau de grains, appelée pression granulaire P_g, est obtenue en retranchant la pression interstitielle à la pression totale. Pour une suspension

de particules de masse volumique ρ_p immergées dans un fluide de masse volumique ρ_f, la pression granulaire à une profondeur z de l'empilement est définie par $P_g = \Delta\rho\phi gz = (\rho_p - \rho_f)\phi gz$ avec g la constante gravitationnelle. En termes de contraintes, la loi de Coulomb (Eq.(1.7)) s'exprime alors :

$$\sigma_f = \mu P_g \tag{1.8}$$

Avec σ_f la contrainte frictionnelle.

1.2.2.3 Contacts lubrifiés

Le mouvement relatif de particules immergées dans un fluide engendre des interactions hydrodynamiques. Lorsque les particules ne sont séparées que par une fine couche de fluide, ce qui est effectivement le cas en régime de concentration dense, on parle alors de contacts lubrifiés. Pour des particules sphériques, il existe un contact lubrifié lorsque la distance h entre les deux grains est inférieure à leur rayon R. L'interaction entre les deux particules peut alors être évaluée en utilisant l'approximation de la lubrification [5]. Considérons le cas de deux sphères, de même rayon R, séparées d'une distance h, qui se déplacent l'une vers l'autre avec une vitesse $V_1 = V_2 = \dot{h}$ dans un fluide de viscosité η_f (Fig.1.11(a)). Le rapprochement des particules induit une surpression entre les sphères qui provoque alors l'écoulement du fluide dans cette fine couche de fluide. Cette surpression entraine une force répulsive sur chaque particule qui s'écrit au premier ordre $F_{lub} = \frac{3\pi}{2}\eta_f R^2 \frac{\dot{h}}{h}$. On notera que les dissipations d'énergie liées au mouvement du fluide entre ces fines couches sont beaucoup plus importantes que celles résultant du mouvement dans le reste du fluide [17].

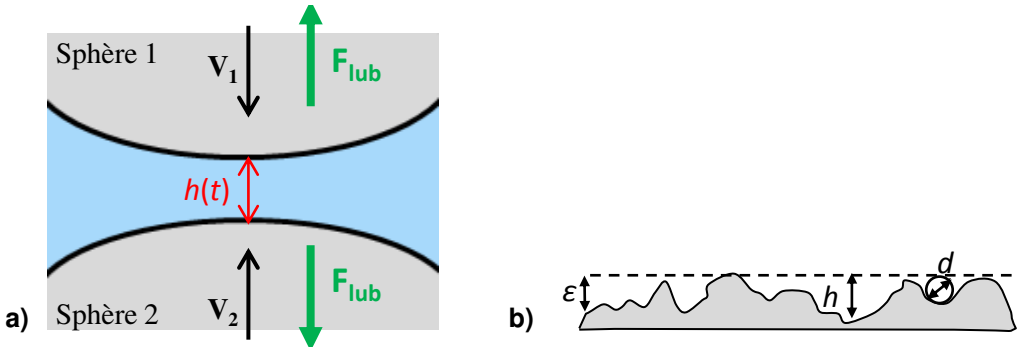


FIGURE 1.11 – a) Représentation d'un contact lubrifié. b) Agrandissement d'une surface rugueuse. La ligne pointillée représente la plan de référence qui passe par les sommets de la surface réelle. D'après Coussot [9].

Remarquons que la force de lubrification varie en $1/h$, elle diverge donc quand la distance h entre

les grains tend vers zéro, ce qui suppose que les particules ne peuvent jamais rentrer en contact. Cette divergence est purement théorique et s'applique au cas de sphères parfaitement lisses. En réalité, les grains présentent des irrégularités à leur surface et il existe toujours une distance entre les grains de l'ordre de leur rugosité. Par conséquent, dans le cas réel, la force de lubrification ne peut pas diverger et deux grains peuvent rentrer en contact. La rugosité doit donc apparaître dans l'expression de F_{lub}. Le problème est que la taille des rugosités varie en fonction de la position considérée à la surface (Fig. 1.11(b)). On peut donc prendre une rugosité moyenne ϵ, définie comme le diamètre moyen des sphères pouvant être placées sous le plan de référence de la surface solide, soit $\epsilon =< d >$ (Fig. 1.11(b)). La valeur maximale de la force normale de lubrification vaut alors $F_{lub} = \frac{3\pi}{2}\eta_f R^2 \frac{\dot{h}}{\epsilon}$.

La force de lubrification est une force répulsive. Pour que les grains rentrent en contact, il faut exercer une force supplémentaire capable de contrer cette force de lubrification. Dans le cas d'un écoulement de cisaillement, la vitesse de rapprochement est de l'ordre de $R\dot{\gamma}$ et la valeur minimale de F_{lub} à vaincre est de l'ordre de $\eta_f R^3 \frac{\dot{\gamma}}{h}$. La force due au cisaillement de l'ordre de $\eta\dot{\gamma}R^2$ n'est donc pas suffisante pour des suspensions concentrées ($h << R$). Il faut donc un effort supplémentaire, de type pression externe ou pesanteur, assez important pour permettre aux particules de rentrer en contact direct. Dans le cas contraire, les particules restent séparées par un film de fluide et le mouvement est lubrifié.

1.2.2.4 Contacts collisionnels

Pour que les contacts collisionnels prédominent, il faut que la durée du contact soit brève de telle sorte que les échanges de quantité de mouvement soient prépondérants vis à vis des forces de transmission par contacts frictionnels. Cette condition est remplie lorsque la suspension est soumise à de forts gradients de vitesse. La différence entre contact frictionnel et contact collisionnel réside donc dans leur durée.

Estimons la durée d'un contact collisionnel. Soit deux particules sphériques, de masse m_p, de rayon R, soumises à un écoulement de cisaillement. La vitesse de rapprochement est de l'ordre de $v = R\dot{\gamma}$. On peut supposer que l'énergie cinétique des grains $E_c = 2(\frac{1}{2}m_p v^2)$ est convertie en énergie élastique $E_{el} = 2F_{Hertz}\delta_e$ [2] avec δ_e l'enfoncement typique lors du choc (Fig.1.9) et F_{Hertz} la force de contact élastique définie par $F_{Hertz} \sim E\sqrt{R}\delta_e^{3/2}$ (contact de Hertz) avec E le module d'Young. La durée d'une

2. Le facteur multiplicatif qui vaut 2 provient de la présence de deux particules.

collision t_c, donnée par le rapport δ_e/v, s'écrit [8, 9, 18] :

$$t_c \approx \left(\frac{RE}{m_p}\right)\dot{\gamma}^{-1/5} \tag{1.9}$$

Estimons maintenant la durée d'un contact frictionnel, notée t_f. Elle est du même ordre de grandeur que la durée caractéristique de l'écoulement de cisaillement, soit :

$$t_f = 1/\dot{\gamma} \tag{1.10}$$

t_f représente donc le temps nécessaire pour atteindre une déformation $\gamma = 1$, correspondant à un déplacement relatif d'un diamètre de grains.

1.2.3 Mesures rhéologiques - Loi de comportement

Les suspensions granulaires présentent plusieurs comportements non-newtoniens en régime stationnaire caractérisés par la présence d'un seuil d'écoulement, des contraintes normales, une rhéofluidification ou au contraire un rhéoépaississement selon les conditions d'écoulement considérées. Malgré des avancées considérables, la compréhension de ces comportements est loin d'être totalement acquise [19] et le lien entre les propriétés macroscopiques et les interactions inter-granulaires reste un sujet de débat. En outre, les mesures rhéologiques sont loi d'être exemptes de difficultés. En effet, des phénomènes de migration de particules ou de localisation d'écoulement sous cisaillement ont été observés. Nous proposons de passer brièvement en revue ici les différents travaux de la littérature dans le but d'introduire progressivement les objectifs de la thèse. A notre connaissance, il n'existe pas d'étude détaillée sur le comportement de suspensions granulaires en conditions instationnaires.

1.2.3.1 Contrainte seuil

De nombreux auteurs [6, 20, 21, 22, 23] ont observé la présence d'un seuil d'écoulement sur des suspensions granulaires denses. Une courbe typique d'écoulement est montrée en Fig.1.12(a). A bas cisaillement, la contrainte est indépendante du taux de cisaillement et elle est proportionnelle à la contrainte normale. Ce régime frictionnel est analogue à celui des granulaires secs [24, 25]. A haut cisaillement, la contrainte croît avec le taux de cisaillement, jusqu'à devenir proportionnel à celui-ci et à la viscosité du fluide interstitiel à très haut gradient de vitesse. Ce régime visqueux est cette fois-ci similaire à celui des suspensions homogènes classiques de sphères dures [26]. Les suspensions

granulaires possèdent donc des propriétés inhérentes à la fois aux milieux granulaires secs et aux suspensions [27], ce qui en fait une classe à part.

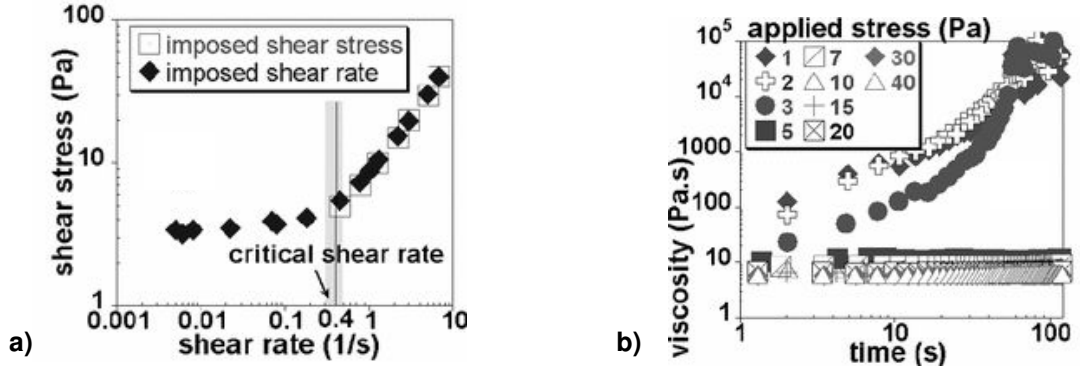


FIGURE 1.12 – a) Courbe d'écoulement (contrainte (σ) en fonction du taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$)) pour une suspension granulaire, obtenue à contrainte et taux de cisaillement imposé. D'après Huang *et al.* [21]. b) Évolution temporelle de la viscosité, obtenue à contrainte imposée, pour différentes valeurs de contraintes de cisaillement. D'après Huang *et al.* [21].

Huang *et al.* [21] caractérise cette transition frictionnelle-visqueuse par une bifurcation de viscosité. A contrainte imposée, celle-ci est associée à la transition entre un état bloqué pour $\sigma < \sigma_c$ et un état d'écoulement pour $\sigma > \sigma_c$, avec σ_c une contrainte critique. En effet, en Fig.1.12(b), la viscosité augmente avec le temps jusqu'à diverger à l'infini pour $\sigma < \sigma_c$ alors qu'elle atteint une valeur finie pour $\sigma > \sigma_c$. A taux de cisaillement imposé, cette bifurcation coïncide avec la transition d'un écoulement localisé dans une certaine épaisseur du matériau à un écoulement homogène dans tout le milieu. Que ce soit à contrainte ou à taux de cisaillement imposé, la transition se fait à $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_c$ (Fig. 1.12(a)). Le paramètre pertinent qui caractérise cette transition frictionnelle-visqueuse est le nombre de Leighton critique défini par :

$$Le_c = \frac{\eta_f \dot{\gamma}_c}{\sigma_c} \tag{1.11}$$

Avec η_f la viscosité du fluide.

Ce nombre caractérise le rapport entre les forces visqueuses et les forces frictionnelles. La contrainte critique σ_c dépend peu de la viscosité du fluide, contrairement au taux de cisaillement critique qui varie en $1/\eta_f$. Dans plusieurs travaux [6, 20, 21], ce comportement macroscopique a été interprété à l'échelle microscopique par une transition entre des contacts frictionnels à bas cisaillement vers des contacts lubrifiés à haut cisaillement. Les mesures de viscosité réalisées à l'échelle locale par Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) donnent une autre interprétation de ces résultats macroscopiques. En effet, Ovarlez *et al.* [28] ont montré que, à l'échelle locale, le comportement est purement visqueux.

Le régime frictionnel macroscopique est le résultat de la localisation de l'écoulement.

Le terme « localisation » signifie qu'il coexiste des zones cisaillées et immobiles dans le matériau. Par exemple, sur la Fig.1.13, on constate que seul une partie de la suspension granulaire est cisaillée pour des vitesses de rotation inférieures à 9 tours par minute. Coussot *et al.* [7] et Ovarlez *et al.* [29] attribuent ce phénomène à l'hétérogénéité de la contrainte dans ces matériaux qui se comportent comme des fluides à seuil. Le taux de cisaillement est nul là où la contrainte de cisaillement est inférieure au seuil d'écoulement.

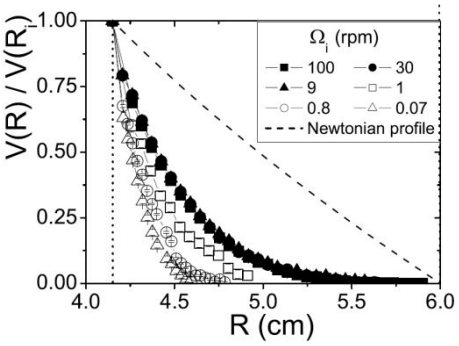


FIGURE 1.13 – Profils de vitesse adimensionnés par la vitesse du cylindre intérieur pour une suspension granulaire à 58 % cisaillée en cellule de Couette. D'après Huang *et al.* [21].

Les travaux de Fall *et al* [23] ont permis d'approfondir l'origine physique de cette localisation en montrant explicitement que ce phénomène n'était présent que pour des suspensions non isodenses. Tant que la force visqueuse est inférieure à la force de gravité, les contacts entre particules sont frictionnels et l'écoulement est localisé. Au contraire, lorsque la force visqueuse l'emporte, par augmentation de la vitesse de cisaillement, la localisation disparait et tout le matériau est cisaillé (vitesse supérieure à 9 tours par minute en (Fig.1.13)). La contrainte seuil du matériau est donc liée à une compétition entre sédimentation et écoulement de cisaillement.

1.2.3.2 Contraintes normales et dilatance

Le nombre d'études sur les contraintes normales est beaucoup plus faible que sur la contrainte de cisaillement. La détermination des contraintes normales dans des suspensions non browniennes denses dans le régime visqueux newtonien est un sujet récent qui a connu un regain d'intérêt cette dernière décennie [30, 31, 32, 33]. Zarraga *et al.* [30] sont les premiers à avoir donné une détermination claire des différences de contraintes normales en analysant notamment la déformation de la surface libre dans un écoulement autour d'un barreau tournant. Leurs résultats montrent que N_1 et N_2 sont négatives, avec

$|N_2| > |N_1|$. Pour une fraction volumique comprise entre 0.3 et 0.56, les valeurs négatives de N_1 et N_2 engendrent une déflexion négative de la surface libre, contrairement à ce qui est typiquement observé dans un fluide viscoélastique. Pour cette raison, on appelle ce phénomène « l'effet anti-Weissemberg ». L'apparition de ces contraintes normales peuvent s'expliquer par une microstructure anisotrope avec une asymétrie amont-aval observée expérimentalement [34, 35] et par simulation numérique [36, 37].

Pour des concentrations plus denses ($\phi > 0.56$), les fortes différences de contraintes normales peuvent engendrer des phénomènes de dilatance. Considérons un milieu granulaire un tant soit peu compact, avec une fraction volumique proche de la fraction volumique d'entassement maximal ϕ_m. Le déplacement d'une particule de l'ordre de sa taille va entrainer le déplacement collectif des autres particules, ce qui va provoquer une dilatation apparente du matériau et donc une diminution de la fraction volumique. Ce phénomène a été mis en évidence par l'expérience de dilatance de Reynolds (Fig.1.14(a)) [38]. Du sable saturé en eau est placé dans une poche élastique surmontée d'un capillaire équipé d'un niveau pour repérer la hauteur d'eau. En appuyant sur cette poche, le niveau d'eau dans le capillaire diminue. Les matériaux étant incompressibles, c'est bien le volume global du ballon qui a augmenté. En effet, lors de la compression du ballon, les grains s'écartent les uns des autres afin de pouvoir se déplacer dans le milieu, ce qui a pour conséquence une augmentation du volume des interstices, volume comblé par l'eau du milieu (Fig.1.14(b)). La déformation du ballon a donc provoqué la dilatation du milieu granulaire.

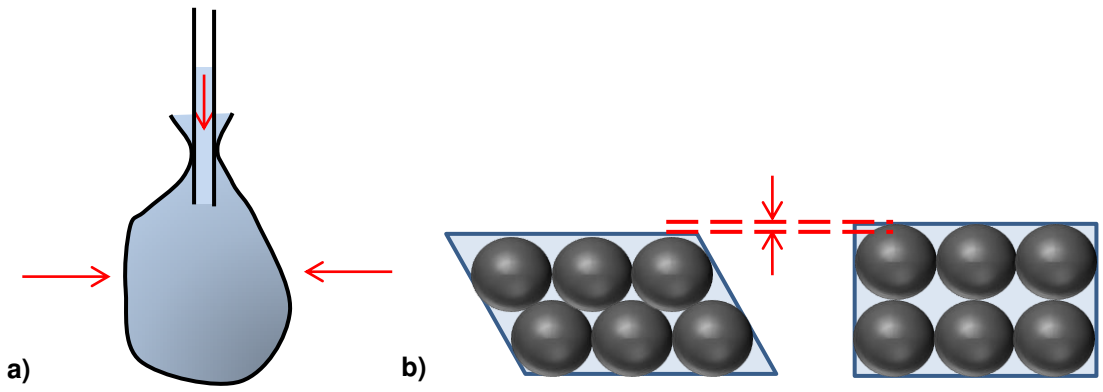


FIGURE 1.14 – a) Expérience de Reynolds [38]. b) Mise en évidence du principe de dilatance.

Le phénomène de dilatance a été observé dans les suspensions granulaires soumises à un écoulement de cisaillement, par la mesure des contraintes normales. Le système se dilate alors dans la direction perpendiculaire au gradient de vitesse [39]. A.Fall *et al.* [40] ont montré que le rhéoépaississement

observé sur une suspension de fécule de maïs était une conséquence directe de la dilatance de Reynolds [41].

1.2.3.3 Rhéofluidification et rhéoépaississement

Parmi les nombreuses données de la littérature, la plupart des suspensions concentrées ont un comportement rhéofluidifiant, c'est à dire une viscosité qui chute avec la contrainte ou le taux de cisaillement. Si on reprend l'exemple de la figure 1.12(b), on voit en effet que la viscosité diminue quand la contrainte de cisaillement augmente, à fort gradient de vitesse. De façon très générale, on interprète ce phénomène comme une réorganisation des particules tendant à faciliter l'écoulement. Par opposition, le comportement rhéoépaississant qui est attribué à une augmentation de viscosité est plus difficile à capturer. Dans la revue bibliographique proposée par Barnes [42] sur diverses suspensions de particules, toutes les suspensions devraient présenter un comportement rhéoépaississant dans des conditions adéquates. En effet, en Fig.1.15, les suspensions présentent un comportement rhéofluidifiant pour $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$ suivi d'un comportement rhéoépaississant compris entre $\dot{\gamma}_c$ et $\dot{\gamma}_m$. Ceci implique que le comportement rhéofluidifiant observé, suivi généralement d'un plateau newtonien, doit tendre vers ce comportement rhéoépaississant. La fenêtre d'observation $[\dot{\gamma}_c - \dot{\gamma}_m]$ dépend entre autres de la fraction volumique, du fluide interstitiel ou encore de la forme des particules.

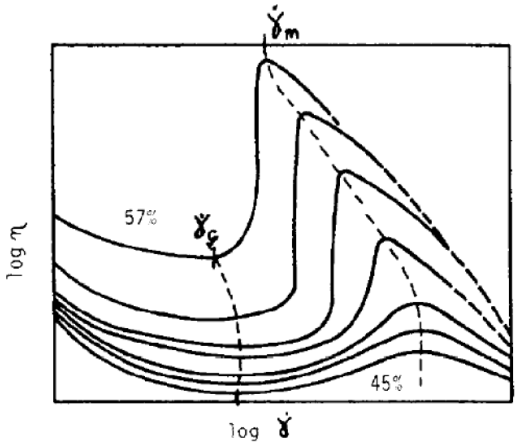


FIGURE 1.15 – Représentation schématique de la viscosité (η) en fonction du taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$) pour une suspension à différentes valeurs de fraction volumiques (ϕ). Le rhéoépaississement est observable dans la gamme de taux de cisaillement $[\dot{\gamma}_c - \dot{\gamma}_m]$. D'après Barnes [42].

Dans les systèmes où le rhéoépaississement est présent, ce phénomène est plus ou moins marqué. Dans le cas d'une suspension de fécule de maïs, l'augmentation de viscosité peut même être abrupte. En dépit d'un nombre croissant d'études sur le sujet, l'origine microstructurale de ce phénomène

fait encore l'objet de débats. On peut référencer trois mécanismes [43] : la formation de clusters hydrodynamiques [44], une transition ordre désordre [45] ou la dilatance du système [46]. Récemment Fall *et al.* [40] ont étudié le rhéoépaississement dans des suspensions granulaires modèles par des mesures locales de vitesse et de concentration en IRM. Une transition de régime prend place entre un régime visqueux à bas cisaillement ($\sigma \propto \dot{\gamma}$) vers un régime rhéoépaississant inertiel ($\sigma \propto \dot{\gamma}^2$). Dans ce dernier, qualifié de régime de Bagnold, le rhéoépaississement est alors attribué à une migration des particules.

1.2.3.4 Migration

En 1980, Gadala-Maria et Acrivos [47] furent les premiers à observer une chute de viscosité au cours du temps pour des suspensions de particules de concentration $\phi > 30$ %. Leighton et Acrivos (1987) [48] attribuèrent l'origine de ce phénomène à la migration de particules. Deux approches différentes existent pour interpréter ce phénomène. La première suppose une diffusion des particule sous l'effet du gradient de cisaillement, allant des régions à haut cisaillement vers les régions à bas cisaillement [36, 49, 50, 51]. La deuxième approche suppose que la migration est due au gradient de contraintes normales [52, 53].

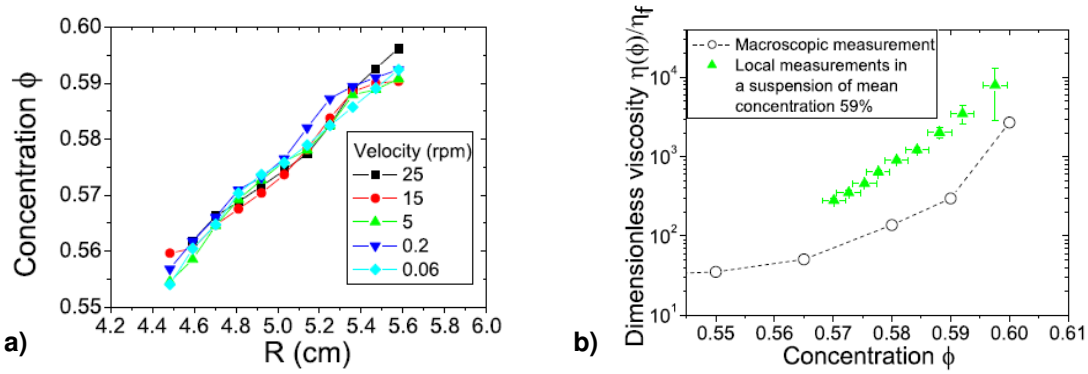


FIGURE 1.16 – a) Profils de concentration obtenus par IRM pour une suspension granulaire à 58 %, cisaillée à différentes vitesses de rotation dans une cellule de Couette. D'après Ovarlez *et al.* [28]. b) Viscosité relative (η/η_f avec η_f la viscosité du fluide interstitiel) en fonction de la concentration (ϕ) obtenue par des mesures locales et macroscopiques dans une cellule de Couette. D'après Ovarlez *et al.* [28].

Les expériences en Imagerie par Résonnance Magnétique (IRM) permettent de mesurer les profils de concentration sous cisaillement [28, 54]. La Fig.1.16(a) montre effectivement que les particules sont d'autant plus nombreuses qu'on s'éloigne du cylindre mobile. Le phénomène est instantané dans les suspensions concentrées et il est irréversible. L'hétérogénéité du matériau peut donc affecter de façon

non négligeable les mesures macroscopiques rhéologiques, comme mis en évidence par Ovarlez *et al.* [28]. Pour s'en convaincre, il suffit de se reporter à la Fig.1.16(b) : les mesures macroscopiques sont inférieures aux mesures locales de viscosité. L'hétérogénéité de la suspension granulaire induit donc une sous estimation des mesures rhéométriques macroscopiques.

1.2.4 Difficultés d'une mesure rhéologique classique

Les premières difficultés liées à la caractérisation rhéologique des pâtes granulaires sont celles rencontrées pour caractériser un fluide un seuil en général. Lors d'une mesure en rhéologie, l'écoulement de cisaillement doit être le plus homogène possible avec un profil de vitesse linéaire pour que le gradient de vitesse tiré de la mesure rhéologique corresponde au gradient local. La taille des particules contraint en général à l'utilisation d'une géométrie de type Couette à entrefer large, ce qui ne permet pas d'assurer l'homogénéité de l'échantillon (contrairement à la géométrie cône plan ou à la géométrie Couette à entrefer mince). Les hétérogénéités d'écoulement (migration, localisation, sédimentation) ne sont pas sans conséquence sur le comportement macroscopique du matériau, notamment dans le régime frictionnel (Fig.1.12(a)). Les échantillons sont également sensibles à des phénomènes de glissement aux parois dans le cas de surfaces lisses qui peuvent fausser la mesure. Ce phénomène est dû à un cisaillement préférentiel d'une fine couche de fluide près des parois. Pour y remédier, il suffit de remplacer les surfaces lisses par des surfaces rugueuses du même ordre de grandeur que la taille des particules [8]. La paroi extérieure de la cellule de Couette utilisée dans le cadre de cette thèse sera munie de chicanes et le cylindre intérieur sera un scissomètre à 4 pales (ou vane). En tournant autour de son axe, le vane décrit un cylindre fictif dont la rugosité est celle des particules.

Le second type de difficultés rencontrées est lié au fait que le transport des contraintes se fait à travers un réseau de contacts intergranulaires complètement hétérogène (section 1.3.2.4) donnant lieu à un comportement frictionnel associé à une instabilité de type stick slip [3]. Le comportement rhéologique est donc très sensible à la topologie de l'empilement. Étant donné que ces matériaux sont athermiques, i.e. insensibles au mouvement brownien d'origine thermique, quand les grains sont dans une configuration spatiale donnée, ils demeurent dans cet état et les instabilités de stick-slip se développent. Ce problème ne se pose pas dans le cas de milieux moléculaires car le système explore spontanément toutes les configurations possibles sous l'effet du mouvement brownien d'origine thermique. Des mesures effectuées sur une durée assez longue sont représentatives de l'échantillon. Si on

3. Le comportement lors de glissement successifs de couches de grains les uns par rapport aux autres est fortement non linéaire. L'instabilité se manifeste par une viscosité multi-valuée pour une contrainte égale à la contrainte seuil.

veut une mesure représentative de notre système de matériau granulaire tout entier, il faut faire des moyennes sur toutes les configurations accessibles, ce qui n'est pas envisageable. Par conséquent, il est difficile d'obtenir des mesures reproductibles avec une rhéométrie classique et le résultat de ces mesures est difficile à interpréter [55, 56]. Pour palier ce problème, l'idée est de faire une cellule de mesure capable de générer un mouvement « macro-brownien » dans l'échantillon en le soumettant à des vibrations.

1.3 Modélisation théorique de la viscosité des suspensions granulaires sous cisaillement

Dans la partie précédente, nous avons vu que les suspensions granulaires présentaient différents comportements non newtoniens en conditions stationnaires. Nous présentons dans cette partie les modèles qui ont été développés pour caractériser le comportement sous écoulement de ces systèmes, notamment la rhéologie $\mu(I)$ développée par l'équipe de Pouliquen [27, 57]. Nous nous intéressons également à la relation viscosité versus fraction fraction volumique dans le régime visqueux, telle que présentée en Fig.1.16(b).

1.3.1 Analyse dimensionnelle - Variables pertinentes

L'analyse dimensionnelle est une méthode classiquement utilisée pour déterminer les paramètres pertinents dans une modélisation rhéologique. Nous présentons la démarche la plus commune dans la littérature des suspensions [19, 26], initialement proposée par Krieger [58] et reprise par Pouliquen et al. [27, 57] dans le cas de suspensions granulaires. On considère ici le cas simple d'une suspension de particules sphériques, rigides, monodisperses suspendues dans un fluide newtonien, sans interaction autres que hydrodynamiques. La viscosité η d'une suspension soumise à un cisaillement est alors fonction de 9 variables qui sont liées :

- aux particules : rayon R, masse volumique ρ_p, concentration en nombre N_p
- au fluide : masse volumique ρ_f, viscosité η_f
- aux sollicitations extérieures : énergie thermique k_BT, taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ ou contrainte de cisaillement σ, temps caractéristique de l'expérience t_{exp}

Ce nombre peut être réduit à 6 en formant les nombres sans dimensions suivants :

- la viscosité relative $\eta_r = \eta/\eta_f$

- le rapport des masses volumiques $\rho_r = \rho_p/\rho_f$
- la fraction volumique $\phi = \frac{4\pi}{3} N_p R^3$
- le nombre de Reynolds particulaire en cisaillement $Re_{\dot{\gamma}} = \frac{\rho_f \dot{\gamma} R^2}{\eta_f}$, qui rend compte de la compétition entre effets inertiels et effets visqueux
- le nombre de Péclet $Pe_{\dot{\gamma}} = t_{br}/t_{cis} = \frac{6\pi\eta_f R^3 \dot{\gamma}}{k_B T}$, qui estime l'importance du mouvement brownien ($t_{br} = \frac{6\pi\eta_f R^3}{k_B T}$, temps de diffusion brownienne) par rapport à l'écoulement de cisaillement sur le déplacement des particules ($t_{cis} = 1/\dot{\gamma}$, temps caractéristique de l'écoulement de cisaillement) [4]
- le nombre de Déborah $De = t_c/t_{exp}$, rapport entre le temps caractéristique de relaxation (fonction des autres variables) et celui de l'expérience, qui permet de déterminer le comportement plutôt solide ($De >> 1$) ou liquide ($De << 1$) du matériau

Dans le cas de suspensions granulaires denses, les effets thermiques sont négligeables, ce qui implique que $Pe_{\dot{\gamma}} \to \infty$. Les réorganisations dans une suspension sont contrôlées par la compétition entre le cisaillement qui tend à faire bouger les grains les uns par rapport aux autres et la pression granulaire qui assure la cohésion de l'empilement [27, 57]. Pour des écoulement visqueux ($Re_{\dot{\gamma}} << 1$), le temps microscopique pertinent est le temps que met une particule pour tomber sur une distance de son diamètre sous une pression de confinement P_g défini par $t_{micro} = \eta_f/P_g$ (t_{fall} en Fig.1.17).

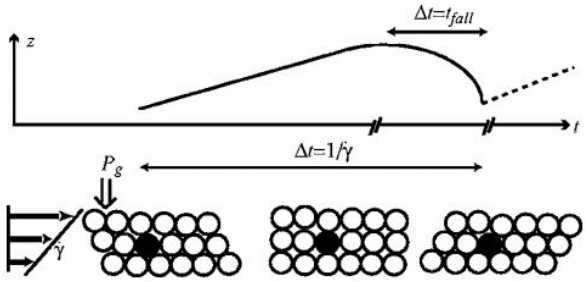


FIGURE 1.17 – Mouvement d'un grain soumis à une pression granulaire (P_g) durant un écoulement de cisaillement ($\dot{\gamma}$). $\Delta t = t_{fall}$ correspond au temps de chute microscopique défini comme le temps que met un grain pour tomber dans le creux entre deux billes consécutives. $\Delta t = 1/\dot{\gamma}$ correspond au temps de déformation macroscopique défini comme le temps que met un grain pour parcourir son propre diamètre.

4. Le nombre de Péclet peut également être vu comme le rapport de l'énergie mécanique fournie par l'écoulement de cisaillement aux particules ($E_{meca} = 6\pi\eta_f R^3 \dot{\gamma}$) et de l'énergie thermique brownienne ($E_{thermique} = k_B T$).

Le rapport de ce temps microscopique ($t_{micro} = t_{fall} = \eta_f/P_g$) et du temps caractéristique de l'écoulement de cisaillement ($t_{cis} = 1/\dot{\gamma}$) forme un nombre sans dimension, le nombre visqueux[5] :

$$I_v = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{P_g} \tag{1.12}$$

La loi de comportement du matériau aux temps longs est alors définie par :

$$\sigma = \eta\dot{\gamma} = \eta_f \eta_r(\phi, \rho_r, I_v, Re_{\dot{\gamma}})\dot{\gamma} \tag{1.13}$$

Dans un esprit de simplification, on se place dans le cas d'une suspension non dominée par la sédimentation[6]. Dans le régime visqueux ($Re_{\dot{\gamma}} << 1$), la loi de comportement (Eq.(1.13)) prend la forme suivante :

$$\sigma = \eta_f \eta_r(\phi, I_v)\dot{\gamma} \tag{1.14}$$

En cas de dilatance, Boyer *et al.* [27] ont montré que ϕ dépendait de I_v. L'Eq.(1.13) se réduit ainsi à :

$$\sigma = \eta_f \eta_r(\phi) \tag{1.15}$$

Boyer *et al.* [27] proposent, à partir de données expérimentales, un modèle rhéologique prenant en compte les interactions frictionnelles et hydrodynamiques. En particulier, le modèle est capable de décrire l'évolution de la viscosité de cisaillement en fonction de la fraction volumique. La viscosité relative prend alors la forme suivante :

$$\eta_r = 1 + \frac{5}{2}\phi\left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-1} + \mu_c\left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2} \tag{1.16}$$

Avec $\mu_c = \mu_1 + \frac{\mu_2 - \mu_1}{1 + I_0\phi^2(\phi_m - \phi)^{-2}}$, $\phi_m = 0.586$, $\mu_1 = 0.32$, $\mu_2 = 0.7$, $I_0 = 0.005$. Ce modèle s'ajuste parfaitement aux données expérimentales de la littérature (Fig.1.18).

Dans la relation (1.16), la fraction volumique dépend du nombre visqueux I_v telle que :

$$\phi = \frac{\phi_m}{1 + I_v^{1/2}} \tag{1.17}$$

5. Le nombre visqueux I_v est également défini comme le rapport de deux contraintes, la contrainte visqueuse ($\eta_f\dot{\gamma}$) et la pression granulaire (P_g).

6. Dans la littérature, de nombreux travaux ont été réalisés sur des suspensions isodenses ($\rho_p \sim \rho_f$), s'affranchissant ainsi des effets de sédimentation. Dans le cadre de cette thèse, les suspensions sont gravitationnelles ($\rho_p > \rho_f$) donc assujetties à ce phénomène. Néanmoins, les échantillons sont suffisamment denses ($\phi \approx 0.61$) pour que la sédimentation soit limitée du fait de l'encombrement géométrique.

Cette relation $\phi = \phi(I_v)$ permet de prendre en compte le changement de la fraction volumique sous l'effet de la dilatance quand le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ augmente. Avec ce modèle, la rhéologie des suspensions granulaires prend la forme d'une loi de fricton ($\sigma = \mu(I_v)P_g$) et d'une loi de fraction volumique ($\phi = \phi(I_v)$ (Eq.(1.17)). En particulier, ce modèle est capable de décrire la transition frictionnelle-visqueuse décrite dans la section 1.2.3.1.

Malgré son succès pour décrire l'écoulement de suspensions granulaires, ce modèle ne permet pas de rendre compte de l'arrêt des écoulements au voisinage de la transition de jamming [7].

1.3.2 Relation viscosité-fraction volumique

Dans le régime visqueux, les suspensions granulaires se comportent comme des suspensions homogènes de sphères dures. De nombreuses données expérimentales et numériques existent dans la littérature sur l'évolution de la viscosité relative en fonction de la fraction volumique pour des suspensions de sphères dures, concentrées ou non. Certaines ont été réalisées sur la viscosité newtonienne à bas cisaillement η_0 alors que d'autres portent sur la viscosité newtonienne à haut cisaillement η_∞ [44, 59, 60, 61, 62, 63]. Quelques données expérimentales extraites de [59] sont présentées en Fig.1.18, pour des suspensions de sphères dures non browniennes. La viscosité relative augmente avec la fraction volumique puis diverge dès lors que la fraction volumique se rapproche de la fraction volumique d'empilement maximal ϕ_m. En effet, la présence d'une particule dans un fluide perturbe le champ des vitesses au sein du milieu, générant une dissipation d'énergie supplémentaire liée aux frottements visqueux. Par conséquent, l'ajout des particules induit une augmentation de la viscosité jusqu'à diverger quand ϕ tend vers ϕ_m. Dans les modèles de viscosité, ϕ_m est souvent un paramètre ajustable. Sa valeur dépend de la microstructure de la suspension et peut varier entre 0.63 et 0.72 pour des billes sphériques et monodisperses [64, 65].

Une multitude de modèles existent dans la littérature pour décrire cette évolution de la viscosité en fonction de la fraction volumique. Einstein [66] fut le premier à proposer un modèle théorique de viscosité en 1906 défini par $\eta_r(\phi) = 1 + 2.5\phi$ (Eq.(1.18)). Cette dépendance linéaire n'est valable que pour les faibles valeurs de ϕ (< 5 %) (Fig.1.18), les interactions entre particules devant être négligeables. En considérant des interactions de paire entre particules, Batchelor et Green [67] (Eq.(1.19)) ont étendu le modèle d'Einstein à des concentrations de l'ordre de 10 %. Depuis ces travaux, de nombreux efforts ont été fournis pour étendre le modèle d'Einstein à des concentrations plus élevées. Néanmoins,

7. Cela provient du fait que cette rhéologie est une rhéologie locale qui ne prend pas en compte les corrélations à longue portée (Fig.1.7).

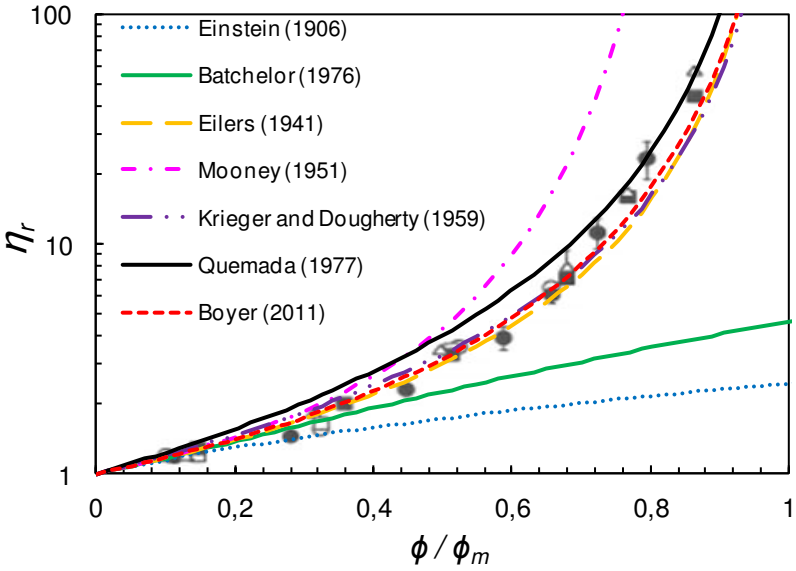


FIGURE 1.18 – Viscosité relative (η_r) en fonction de la fraction volumique réduite (ϕ/ϕ_m avec ϕ la fraction volumique et ϕ_m la fraction volumique d'entassement maximal). Les symboles correspondent aux données expérimentales extraites de Chang et Powell [59] sur des suspensions de sphères dures monodisperses, à haut cisaillement. Les lignes correspondent à l'ajustement des données expérimentales par les modèles présentés en tableau 1.1 et au modèle de Boyer *et al.* [27] (Eq.(1.19)).

TABLE 1.1 – Corrélations entre la viscosité réduite (η_r) et la fracion volumique (ϕ) pour des suspensions de sphères dures.

Auteur(s)	Équation	No.	Paramètres
Einstein (1906) [66]	$\eta_r = 1 + 2.5\phi$	(1.18)	
Batchelor (1976) [67]	$\eta_r = 1 + 2.5\phi + k\phi^2$	(1.19)	k compris entre 5.2 et 7.6
Eilers (1941) [68]	$\eta_r = \left[1 + \frac{1}{2}[\eta]\left(\frac{\phi}{1-\phi/\phi_m}\right)\right]^2$	(1.20)	$[\eta] = 2.5$ (sphères), ϕ_m ajustable
Mooney (1951) [69]	$\eta_r = \exp\left(\frac{[\eta]\phi}{1-\phi/\phi_m}\right)$	(1.21)	$[\eta] = 2.5$ (sphères), ϕ_m ajustable
Krieger and Dougherty (1959) [70]	$\eta_r = \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-q}$	(1.22)	$q = [\eta]\phi_m$, ϕ_m ajustable
Quemada (1977) [71]	$\eta_r = \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2}$	(1.23)	ϕ_m ajustable

du fait d'un manque de compréhension des interactions entre particules ajoutées aux interactions hydrodynamiques, il est très difficile d'élaborer un modèle théorique. Face à cette restriction, des modèles empiriques ou phénoménologiques furent développés.

Nous proposons quelques relations dans le tableau 1.1 qui seront testées sur nos suspensions granulaires. Le modèle d'Eilers [68] (Eq.(1.20)) a l'avantage de satisfaire aux conditions à basse et forte concentrations, i.e. $\lim_{\phi \to 0} \eta_r = 1 + 2.5\phi$ and $\lim_{\phi \to \phi_m} \eta_r = \infty$. Un autre modèle satisfaisant est le modèle de Krieger Dougherty [70] (Eq.(1.21)), très répandu dans la littérature. Basé sur le modèle de Mooney [69] (Eq.(1.22)), ce modèle suppose que l'augmentation de viscosité est due à l'ajout de particules dans une suspension contenant déjà des particules. Le modèle de Quemada [71] (Eq.(1.23)), similaire au modèle de Krieger en prenant $q = 2$, est basé sur un principe de minimisation de l'énergie par effet visqueux. Malgré sa simplicité, ce modèle s'avère être plus que satisfaisant et parvient à décrire une multitude données expérimentales. Il s'applique également aux systèmes avec des interactions entre sphères. Tous ces modèles ont été ajustés aux données expérimentales de la figure 1.18.

1.4 Comportement sous vibrations de milieux granulaires

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes intéressés aux études portant sur le comportement des suspensions granulaires soumises à un écoulement de cisaillement. Rappelons que dans le cadre de cette thèse, notre objectif est de comprendre l'influence des vibrations sur ces matériaux. La plupart des travaux de la littérature portant sur l'étude de cette sollicitation ont été menés sur des milieux granulaires secs. Cependant, dans de nombreuses applications, qu'elles soient environnementales ou industrielles (Fig.1.4), les grains sont immergés dans un fluide. On voit donc l'intérêt de comprendre l'influence des vibrations sur les suspensions granulaires.

1.4.1 Influence des vibrations sur le comportement des milieux granulaires secs

Compaction

De nombreuses études ont montré qu'un milieu granulaire pouvait se tasser au cours du temps sous l'effet des vibrations. L'équipe du James Franck Institute de Chicago a été pionnière dans l'étude de la compaction de billes de verre sous l'effet de vibrations [72, 73]. Des récentes études menées par P. Philippe et D. Bideau [74, 75] et par P. Ribière [76] en accord avec les résultats de l'équipe de Chicago montrent qu'un ensemble de grains soumis à des vibrations (des tapes) se compacte lentement jusqu'à

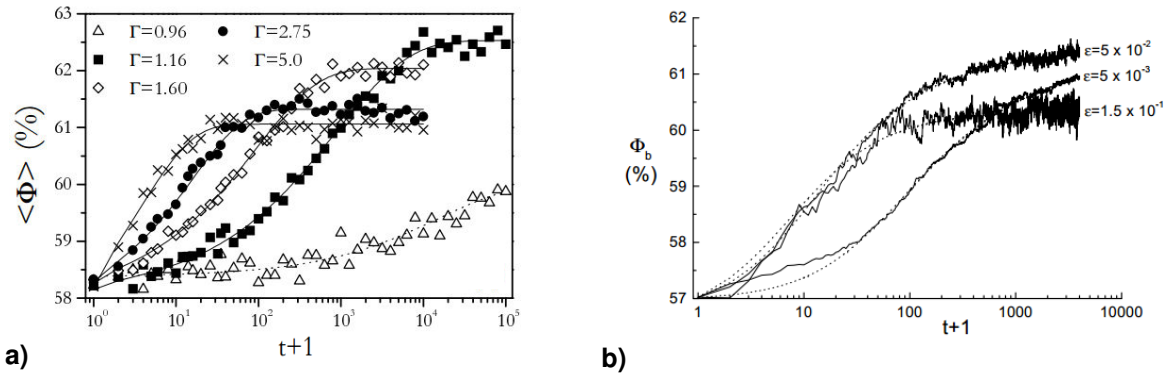


FIGURE 1.19 – a) Évolution temporelle de la fraction volumique ($\langle\phi\rangle$) obtenue expérimentalement pour différentes valeurs d'intensité de tapes (Γ). D'après P. Philippe et D. Bideau [75]. b) Évolution temporelle de la fraction volumique (ϕ_b) obtenue numériquement pour différentes valeurs d'intensité de tapes (ϵ). D'après P. Philippe et D. Bideau [74].

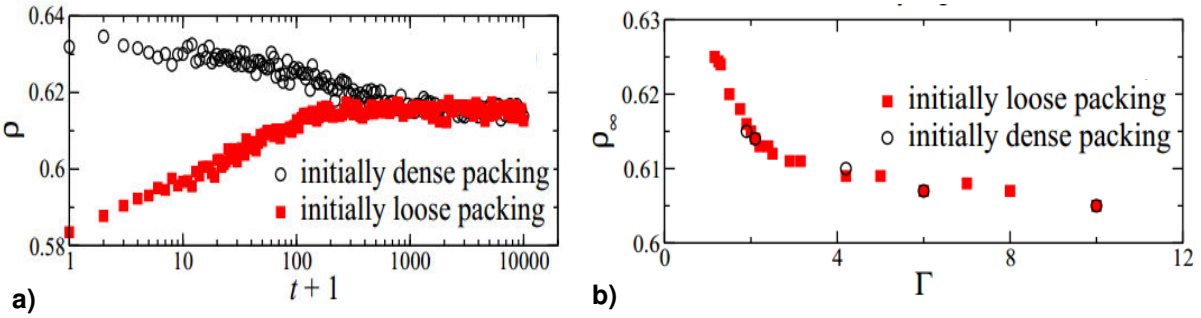


FIGURE 1.20 – a) Évolution temporelle de la fraction volumique (ρ) pour un état initial lâche et un état initial dense, pour une intensité de tapes donnée. b) Évolution de la fraction volumique finale (ρ_∞) en fonction de l'intensité des tapes (Γ), pour un état initial lâche et dense. D'après P. Ribière *et al.* [76].

atteindre un état stationnaire (Fig.1.19).

Comme le montre la figure 1.20 tirée de P. Ribière et al. [76] relative aux paramètres expérimentaux contrôlant l'état stationnaire, cet état est indépendant de l'état initial. Cet état stationnaire est caractérisé par un seul paramètre qui est la compacité et s'apparente à un véritable état thermodynamique contrôlé par le nombre d'accélération $\Gamma = a_p/g$ avec $a_p = A(2\pi f)^2$ l'accélération sous vibrations avec A l'amplitude et f la fréquence des vibrations, et g la constante gravitationnelle. Il a été montré en particulier que le milieu est susceptible de se compacter/dilater lorsque Γ diminue/augmente. Une question importante est de savoir quelle est la dynamique de réorganisation du milieu (et son comportement rhéologique) en fonction de Γ dans cet état stationnaire.

Relaxation des milieux granulaires secs vibrés

Une étude proposée par D'Anna *et al.* [77, 78, 79, 80] a mis en évidence dans l'état stationnaire la présence d'un mouvement brownien à l'échelle macroscopique dans les milieux granulaires denses soumis à des vibrations. Les vibrations sont verticales et sinusoïdales et elle sont caractérisées par le nombre d'accélération Γ. Le pendule de torsion immergé dans un milieu granulaire vibré (insert en Fig.1.21(a)) bouge à chaque réarrangement granulaire, à l'instar d'un thermomètre sensible au bruit granulaire.

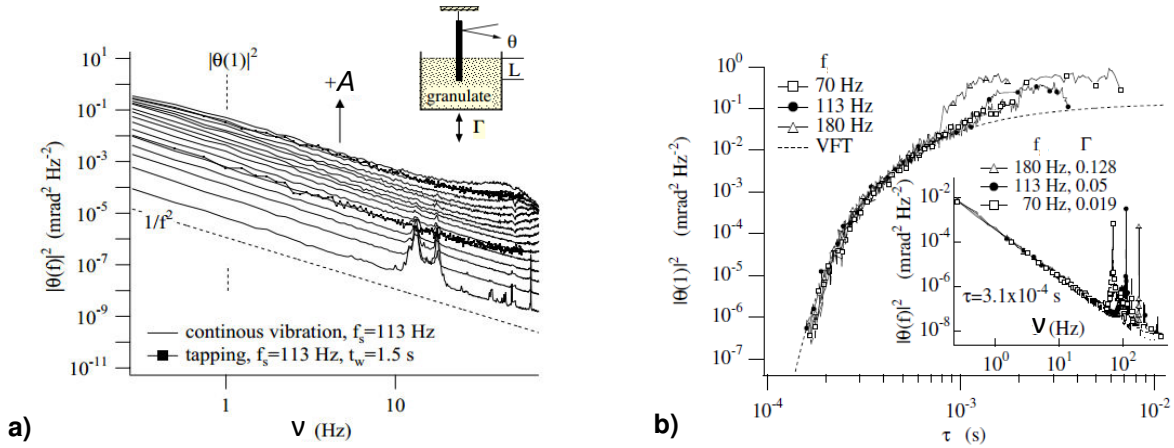


FIGURE 1.21 – a) Spectre de puissance $|\theta(\nu)|^2$ pour différentes valeurs d'amplitude de vibration (A). En insert, le dispositif expérimental. D'après D'Anna et Mayor [80]. La ligne en pointillées est un ajustement des données par l'Eq.(1.18). b) Mesure du bruit $|\theta(1)|^2$ en fonction du nombre sans dimensions $\tau = \sqrt{\Gamma}/(2\pi f)$, pour différentes valeurs de fréquences de vibration. En insert, les spectres de puissance correspondant. D'après D'Anna et Gremaud [78].

La mesure des déviations angulaires, et plus précisément le spectre des déviations angulaires (Fig.1.21(a)), sont caractéristiques d'un processus de diffusion de type marche aléatoire lié à la nature brownienne des fluctuations granulaires [81], même pour des nombres d'accélérations Γ inférieurs à 1. Ces auteurs ont également montré une forte analogie avec les systèmes vitreux. En effet, il a été montré que le temps de réorganisation du système suit une loi de type Vogel-Fulcher-Tamman [78] (Fig.1.21(b)) définie par :

$$\tau_R \sim \exp(-D(\tau - \tau_0)^{-0.9})) \tag{1.18}$$

Avec $\tau = \sqrt{\Gamma}/(2\pi f)$, τ_R le temps de relaxation, D et τ_0 des constantes pour Γ <1.

Pour des nombres d'accélération supérieurs à 1, la relaxation est contrôlée par Γ [82].Les différentes études citées ont permis de mettre en place un « diagramme de phase » pour les granulaires vibrés représenté en figure (Fig.1.22). Pour $\Gamma > \Gamma_f$, avec Γ_f le seuil de fluidisation (égal à 1 ici), i.e. lorsque les

effets des vibrations prédominent sur ceux de la gravité, le milieu granulaire est à l'état « liquide ». Dans ce régime, on peut définir une température effective T_{eff}, analogue à une température granulaire T_g, qui varie en Γ^2. Pour $\Gamma < \Gamma_f$, le système est dans un état de « liquide surfondu » ou un état débloqué, puis tend vers un état « vitreux » ou un état bloqué pour de faibles vibrations, à $\Gamma = \Gamma_0$. Cette transition de l'état débloqué vers l'état bloqué (transition de « jamming ») est analogue à la transition vitreuse dans les verres et peut être parfaitement décrite par une loi de type Vogel-Fulcher-Tamman. Cette similarité rentre complètement dans l'hypothèse d'une description générale des systèmes hors équilibre, comme proposée par Liu et Nagel [16] (Fig.1.8).

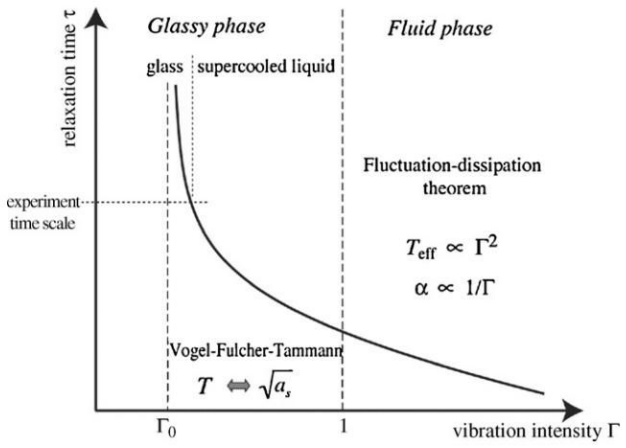


FIGURE 1.22 – Diagramme de phase proposé par Mayor *et al.* [82].

Rhéologie des milieux granulaires secs vibrés

Ce type de comportement (macro-brownien) a également été mis en évidence par des mesures rhéologiques directes [25, 83, 84]. Marchal *et al.* [25] ont montré dans une cellule de Couette vibrée que la viscosité du milieu granulaire présente un plateau newtonien à bas gradient de vitesse (Fig.1.23(a)). Les vibrations semblent éliminer la contrainte seuil du matériau. La viscosité au plateau traduit un comportement macro-brownien et est entièrement contrôlée par l'énergie cinétique injectée au système via les vibrations ($E_v = 1/2mA^2(2\pi f)^2$ avec m la masse de l'échantillon), et non par le nombre d'accélération comme montré par D'Anna *et al.* [78]. L'évolution de la viscosité en fonction de l'énergie de vibration suit également une loi VFT dont E_v est le paramètre de contrôle (et non Γ) (Fig.1.23(b)). Ce comportement macroscopique est en lien avec la dynamique locale à l'échelle des particules.

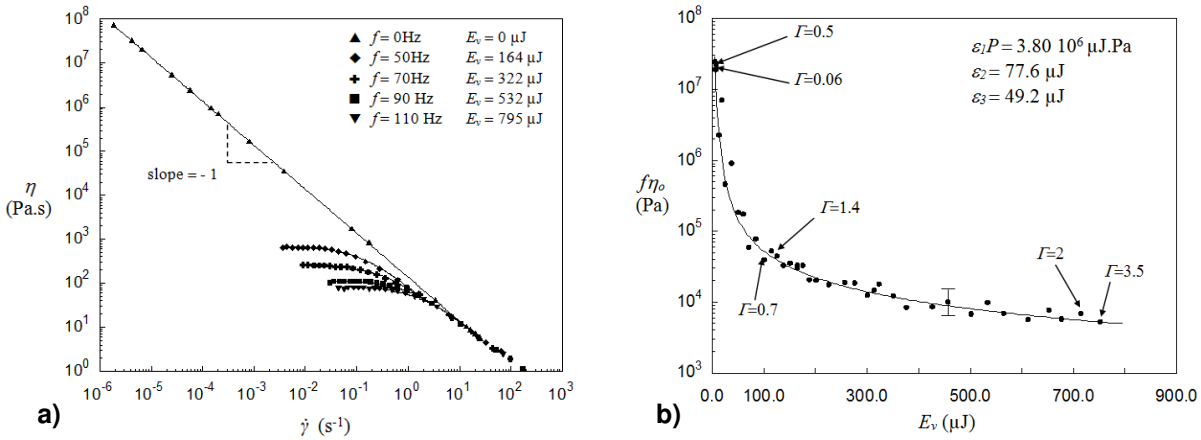


FIGURE 1.23 – a) Courbes d'écoulement (viscosité (η) versus taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$)) pour un milieu granulaire sec vibré à différentes énergies de vibration E_v (à amplitude de vibration fixée). D'après Marchal *et al.* [25]. b) Viscosité au plateau (η_0) en fonction de l'énergie de vibration (E_v). La ligne continue matérialise l'ajustement des données par un modèle de type VFT. D'après Marchal *et al.* [25].

Dynamique à l'échelle locale - Diffusing Wave Spectroscopy

Des techniques récentes de diffusion de la lumière (Fig.1.24) permettent de sonder la dynamique des particules à l'échelle du grain aux temps courts. Les études menées par Zivkovic *et al.* [85, 86] et Kim *et al.* [87] mettent en évidence un comportement de type vitreux dans l'expression des fonctions de relaxation tirées du calcul des corrélations des fluctuations d'intensité de la lumière diffusée par le milieu (exponentielle étirée). Le temps de réorganisation est contrôlé soit par le nombre Γ [87], soit par l'énergie cinétique injectée par les vibrations [85, 86]. Le temps de décorrélation diverge en loi de puissance [87] [8] au voisinage d'un nombre Γ critique associé à l'existence d'un seuil de fluidisation.

Ces différentes études sur la dynamique locale et sur la rhéologie des milieux granulaires secs vibrés vont dans le sens de l'existence d'un comportement vitreux mais la dépendance des temps de relaxation avec les paramètres de vibration (A,f) ne sont pas clairement identifiés.

1.4.2 Influence des vibrations sur le comportement des suspensions granulaires

Les mêmes techniques optiques de diffusion de lumière (DWS) ont également été menées par Zivkovic *et al.* [88] sur le cas de suspensions granulaires saturées en eau. Contrairement au cas sec, ces auteurs ont montré que la relaxation du système sous l'effet des vibrations était exclusivement contrôlée par Γ et ont mis en évidence un seuil de fluidisation à $\Gamma < 1$. Cet effet est due à la dissipation à travers le fluide. La DWS sonde principalement la dynamique des particules aux temps courts, c'est à dire

8. En accord avec la théorie MCT (Mode Coupling Theory)

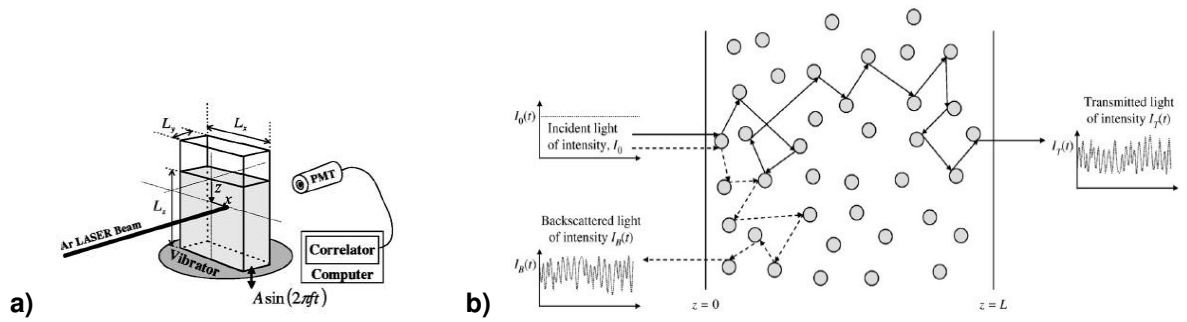


FIGURE 1.24 – a) Principe du dispositif expérimental de diffusion de lumière (DWS). D'après Kim *et al.* [87]. b) Représentation schématique du trajet des rayons lumineux dans un milieu éclairé par un laser. D'après Zivkovic *et al.* [85].

le comportement solide macroscopique de la suspension. Une analyse du comportement visqueux aux temps longs a été menée par Kabla *et al.* [89]. La suspension granulaire vibrée vieillit au cours du temps dans l'état stationnaire, phénomène associé à un fluage des contacts. Leurs travaux montrent que des reorganisations peuvent avoir lieu sans changement de la fraction volumique globale.

Ces différentes études montrent toutes clairement que les vibrations ont un effet sur la réorganisation des particules dans les suspensions mais l'influence des paramètres du système (viscosité du fluide, taille des grains, amplitude et fréquence de vibration) ne sont pas clairement identifiés. Dans le cadre de cette thèse, nous tenterons de comprendre l'influence de ces paramètres sur la dynamique locale du système et sur sa rhéologie, et en particulier le lien entre ces deux échelles (microscopique et macroscopique).

1.5 Objectifs de la thèse

L'écoulement de suspensions granulaires a été le sujet de nombreuses recherches ces dernières années. Malgré des avancées considérables, les propriétés physiques et mécaniques de ces matériaux sont loin d'être totalement comprises. Notamment, le lien entre les comportements non newtoniens observés (seuil d'écoulement, contraintes normales, rhéofluidification, rhéoépaississement) et leur origine microscopique n'a pas été clairement établi. Les études mentionnées précédemment semblent montrer que les vibrations ont un effet sur cette rhéologie complexe. On s'attend donc à une compétition entre les taux de réorganisation dus aux vibrations et ceux dus à l'écoulement de cisaillement. **L'objet de cette thèse est d'apporter une compréhension fondamentale des modifications induites par les vibrations sur les propriétés physiques et mécaniques des suspensions granulaires.**

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés au comportement de suspensions granulaires gravitationnelles (la masse volumique des billes est supérieure à la masse volumique du fluide) modèles, constituées de billes de verre immergées dans un fluide newtonien. La compréhension de l'influence des vibrations sur le comportement du système apporte des éléments de réponse aux problématiques associées aux enjeux environnementaux, industriels et fondamentaux que nous avons présentés en introduction.

Nous nous intéresserons tout d'abord au comportement rhéologique macroscopique de ces systèmes et nous tenterons de répondre aux questions suivantes. Quelle est l'influence des vibrations sur le comportement rhéologique de la suspension granulaire ? Quelle est l'effet de la taille des billes et de la viscosité du fluide interstitiel ? Jusqu'à maintenant, les études portant sur les suspensions granulaires vibrées ne portent que sur des billes immergées dans de l'eau [88, 89]. Après cette caractérisation macroscopique, il est naturel de se poser des questions sur l'origine de ce comportement à l'échelle microscopique. Quelle est l'origine physique du comportement macroscopique observé ? Comment bougent les grains ? L'écoulement de cisaillement a-t-il une influence ? Pour répondre à ces questions, nous nous tournerons vers des mesures en spectroscopie mécanique et en diffusion de lumière.

+

Chapitre 2

Étude du comportement rhéologique à l'échelle macroscopique

Sommaire

2.1 Introduction **50**

2.2 Matériel et Méthodes **51**

2.2.1 Dispositif expérimental : le rhéomètre à poudre 51

2.2.2 Caractéristiques de la suspension granulaire 59

2.2.3 Préparation des échantillons 62

2.3 Comportement rhéologique en régime permanent **65**

2.3.1 Effet des vibrations sur le comportement rhéologique 65

2.3.2 Effet du fluide interstitiel sur le comportement rhéologique d'une suspension granulaire vibrée 68

2.3.3 Régime d'écoulement dominé par l'écoulement de cisaillement 70

2.3.4 Régime d'écoulement dominé par les vibrations 71

2.3.5 Conclusion 79

2.4 Modélisation du comportement rhéologique en régime permanent et transitoire **82**

2.4.1 Abstract 82

2.4.2 Introduction 83

2.4.3 Model 85

2.4.4 Experimental section 89

2.4.5 Comparison of the model with rheological experiments 92

2.4.6 Evolution of the model parameters as a function of Pe_{lub} 100
2.4.7 Discussion 102
2.4.8 Conclusion 103
2.5 Ouverture : application aux suspensions granulaires bidisperses 106
2.5.1 Abstract 106
2.5.2 Introduction 106
2.5.3 Experimental section 108
2.5.4 Results and discussion 109
2.5.5 Conclusion 120
2.5.6 Appendix 121

2.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à l'étude du comportement rhéologique macroscopique de suspensions granulaires modèles denses, composées de billes de verre sphériques et monodisperses immergées dans un fluide newtonien. L'étude rhéologique s'effectue en cisaillant les échantillons dans une cellule de mesure analogue à une cellule de Couette. Les suspensions sont soumises à des vibrations verticales de fréquence et d'amplitude contrôlées, qui se superposent de ce fait à l'écoulement de cisaillement. Nous nous intéressons à des suspensions dites gravitationnelles, la masse volumique des particules est plus grande que celle du fluide, pour se rapprocher des suspensions impliquées dans les applications citées en introduction (sol, boues, béton, crème cosmétique).

La première partie de ce chapitre est destinée à donner une description du protocole expérimental, allant du dispositif de mesure à la préparation des échantillons, en passant par la description des suspensions granulaires modèles utilisées. Le prototype est constitué d'un rhéomètre classique dont la cellule de caractérisation est reliée à un pot vibrant, ce qui permet de reproduire un mouvement brownien à l'échelle macroscopique. En effet, la source de vibration d'origine mécanique est responsable d'une agitation granulaire dans le milieu, dont le caractère brownien a clairement été mis en évidence (Chapitre 1).

Dans la seconde partie, nous nous intéressons à la réponse rhéologique de nos matériaux en régime permanent. L'objectif est de comprendre l'effet des vibrations mais aussi l'influence de la viscosité du fluide interstitiel et de la taille des grains sur la viscosité de la suspension en écoulement. Les résultats présentés ont fait l'objet d'une publication dans *Physical Review Letters* (2012) [90] (Annexe A).

Dans la troisième partie, nous proposons une modélisation de ce comportement rhéologique obtenu en conditions stationnaires, en l'absence et en présence de vibrations. Le modèle est également capable de prédire et de décrire le comportement des suspensions granulaires modèles en conditions instationnaires. Une telle affirmation est démontrée en confrontant le modèle aux données expérimentales obtenues en régime oscillatoire ou lors d'expériences de fluage. Les résultats sont présentés tels qu'ils ont été soumis à *Journal of Rheology* (2014) [91].

La quatrième et dernière partie de ce chapitre est une ouverture sur le comportement rhéologique de ces suspensions granulaires modèles lorsque deux populations de billes de taille différente sont mélangées. L'étude a été réalisée avec des billes de 530 μm et des billes de 100 μm. Une approche de type volume libre permet de décrire le comportement de la suspension en fonction de la fraction en larges particules, la viscosité du fluide, l'amplitude et la fréquence des vibrations. Les résultats sont présentés tels qu'ils ont été soumis à *Rheologica Acta* (2014) [92].

2.2 Matériel et Méthodes

Dans cette section, nous expliquons dans un premier temps le fonctionnement du rhéomètre à poudre utilisé pour déterminer le comportement rhéologique de la matière en grains sous vibrations. L'idée est d'établir les principales équations qui gouvernent la dynamique de la cellule de caractérisation et de l'outil de mesure. Nous présentons ensuite le type de suspension granulaire modèle que nous cherchons à caractériser ainsi que le mode opératoire pour les préparer.

2.2.1 Dispositif expérimental : le rhéomètre à poudre

Présentation du dispositif

Les éléments présentés ici sont essentiellement repris des références [25, 93, 94]. Le rhéomètre à poudre (Fig. 2.1) est un rhéomètre capable de générer une agitation granulaire au sein des échantillons en les soumettant à des vibrations verticales. L'énergie mécanique injectée dans le système remplace l'énergie thermique brownienne inopérante dans ces milieux, ce qui améliore la reproductibilité des mesures. Initialement mis au point d'un point de vue expérimental et théorique à l'aide d'échantillons de billes de verre seules [25], le dispositif permet de caractériser une multitude de milieux granulaires secs de nature diverse tels que des poudres laitières, du ciment ou des particules imprégnées [95]. Les résultats obtenus ont permis d'établir des relations entre le comportement rhéologique et les

caractéristiques physico-chimiques des grains du milieu considéré, ce qui prouve l'efficacité d'un tel dispositif expérimental. Par contre, aucun test n'a été mené sur des granulaires immergés dans un fluide, ce qui constitue l'enjeu de cette thèse.

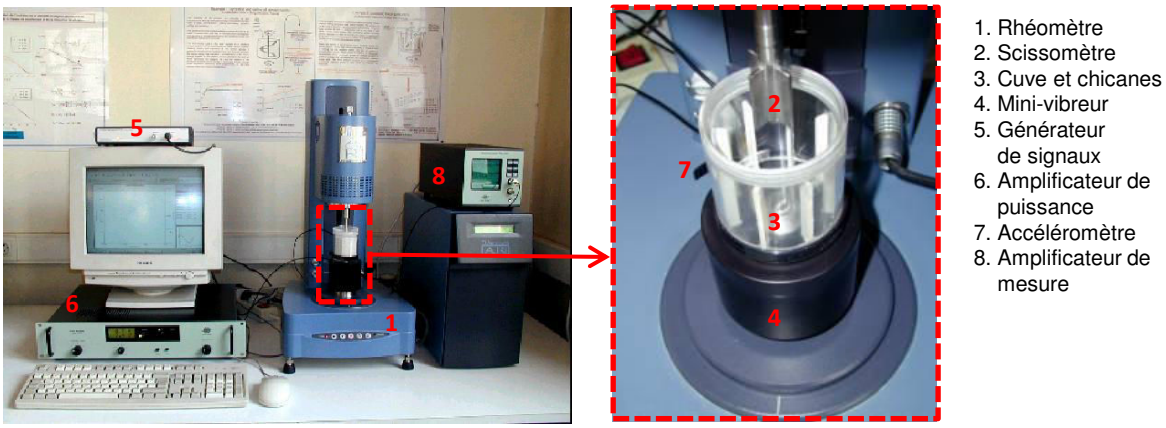


FIGURE 2.1 – Dispositif expérimental du rhéomètre à poudre avec zoom sur la cellule vibrante [94, 25, 56].

L'appareil de mesure est un rhéomètre classique à contrainte imposée (TA Instruments, AR2000). L'ensemble formé de la cuve contenant l'échantillon et la géométrie de mesure (zoom en Fig. 2.1) est analogue à une cellule de Couette. En effet, l'échantillon est placé dans une cellule de mesure cylindrique de rayon $R_c = 25$ mm, munie de chicanes de largeur $W_b = 5$ mm, qui joue le rôle de cylindre extérieur de rayon $R_e = R_c - W_b = 20$ mm. La mesure est effectuée à l'aide d'un scissomètre à 4 pales ou « vane » de hauteur $L = 30$ mm qui décrit un cylindre fictif de rayon $R_i = 10$ mm en tournant autour de son axe. L'échantillon cisaillé est ainsi confiné entre deux cylindres constitués de l'échantillon lui même, ce qui permet d'éviter les glissements aux parois [8]. La cellule de Couette, d'entrefer $R_e - R_i = 10$ mm, est constitué d'un cylindre extérieur fixe et d'un cylindre intérieur mobile. Le cylindre intérieur est mis en mouvement sous l'action d'un couple constant C et l'appareil mesure la vitesse de rotation angulaire $\dot{\theta}$ du vane. L'appareil étant muni d'une boucle de rétroaction, on peut également imposer une vitesse angulaire et mesurer le couple. La contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement sont reliés au couple et à la vitesse angulaire par des constantes d'étalonnage K_σ et $K_{\dot{\gamma}}$ que nous déterminerons à la fin de cette section.

L'échantillon est soumis à des vibrations verticales en reliant la cellule de caractérisation à un mini vibreur électromagnétique (type 4840, Brüel&Kjær) connecté à un amplificateur. La fréquence et l'amplitude des vibrations sont contrôlées grâce à un générateur de fonction relié au pot vibrant et un accéléromètre attaché à la base de la cellule, relié également à un amplificateur de mesure.

La cellule de mesure : un oscillateur harmonique amorti forcé

La cellule de caractérisation reliée au pot vibrant (Fig. 2.2(a)) peut être assimilée à un oscillateur harmonique forcé avec amortissement, comme celui représenté en figure 2.2(b). La masse m_T représente la masse totale de tous les éléments mis en mouvement, à savoir la cuve, l'échantillon et les éléments du vibreur. Le système est vibré grâce à un moteur excitateur via des ressorts de rappel contenus dans le pot vibrant (Fig. 2.2(a)) qui impose une force harmonique $\mathbf{F_{ext}}(t) = F_0 \cos(2\pi f t)\mathbf{e_z}$ avec F_0 l'amplitude de la force, f la fréquence, t le temps et $\mathbf{e_z}$ l'axe vertical descendant (Fig.2.2(b)).

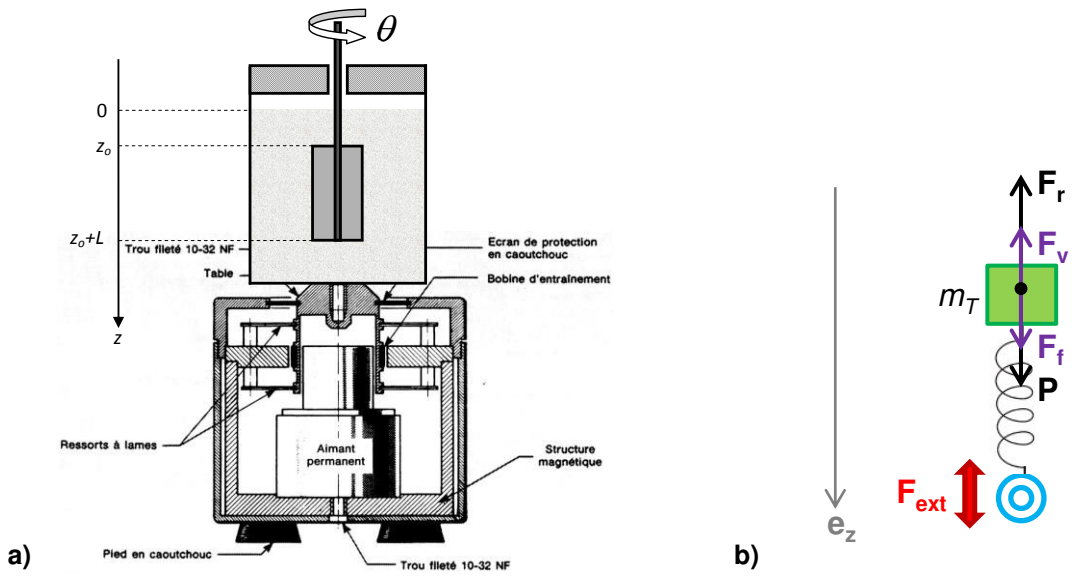


FIGURE 2.2 – a) Cellule vibrante : la cellule de caractérisation contenant l'échantillon est soumise à des vibrations verticales produites par un pot vibrant. D'après Marchal [93]. b) Analogie de la cellule vibrante avec un oscillateur harmonique forcé avec amortissement.

Les forces subies par la masse m_T sont le poids ($\mathbf{P} = m_T g \mathbf{e_z}$ avec g la constante gravitationnelle), la force de rappel ($\mathbf{F_R} = -kz\mathbf{e_z}$, avec k la constante de raideur, z le déplacement vertical), la force de frottement fluide ($\mathbf{F_v} = -\alpha\dot{z}\mathbf{e_z}$ avec α le coefficient d'amortissement fluide) et la force de frottement sec liée aux phénomènes dissipatifs frictionnels du fait de la présence de grains ($\mathbf{F_f}$). Par projection de la seconde loi de Newton suivant $\mathbf{e_z}$, le mouvement de la cellule vibrante est alors régi par l'équation suivante :

$$m_T\ddot{z}(t) + \alpha\dot{z}(t) + kz(t) = F_0 \cos(2\pi f t) + m_T g + F_f(t) \tag{2.1}$$

La force de frottement $\mathbf{F_f}(t)$ est fluctuante en direction et en intensité. Ne connaissant pas cette force, il est impossible de résoudre l'Eq.(2.1). Nous verrons par la suite que les vibrations font apparaître un

plateau newtonien à faible taux de cisaillement, ce qui signifie que la dissipation visqueuse est le phénomène prédominant et qu'il est donc raisonnable de négliger $\mathbf{F_f}(t)$ dans le régime à bas cisaillement. Dans ces conditions, la résolution de l'Eq.(2.1) en régime permanent est une solution bien connue dans la littérature qui met en évidence l'existence d'un phénomène de résonance, d'autant plus marqué que les forces de frottement sont faibles. La fréquence de résonance est déterminée par $2\pi f_0 = \sqrt{k/m_T}$. Sans cellule de mesure, cette fréquence vaut 53 Hz ($m_T = 18$ g et $k = 2\ 10^3$ N.m^{-1}). Avec la cellule de mesure qui fait 130 g et en considérant un échantillon d'environ 160 g, $f_0 = 12.8$ Hz. On prêtera donc une attention particulière aux résultats expérimentaux obtenus au voisinage de cette fréquence et de leurs harmoniques.

Dynamique du vane : mise en évidence d'un mouvement brownien macroscopique

La présence d'un mouvement brownien a clairement été mis en évidence par exemple dans les expériences de l'équipe de D'Anna [78, 96] en immergeant un pendule de torsion dans un milieu granulaire vibré (section 1.4.1). Dans le rhéomètre à poudre, le vane joue un rôle similaire à celui du pendule de torsion. Par conservation du moment cinétique, la déformation angulaire du vane θ est régie par l'équation du mouvement suivante :

$$I\ddot{\theta}(t) + \zeta\dot{\theta}(t) + \kappa\theta(t) = C_f(t) + C_{ext}(t) \tag{2.2}$$

Avec I le moment d'inertie total de l'ensemble vane et axe du rhéomètre ($I = I_{rheo} + I_{vane} = 17.1\ 10^{-6}$ N.m.s^2), ζ un facteur de frottement visqueux, κ la constante de torsion (nulle ici car l'axe est guidé par un palier à air), $C_f(t)$ un couple aléatoire fluctuant sous l'effet des chocs des grains sur le scissomètre et $C_{ext}(t)$ un couple extérieur imposé par le rhéomètre qui dépend du type de test rhéologique.

L'équation (2.2) est une équation de Langevin, équation stochastique établie pour le mouvement brownien [56, 81, 82, 96]. De façon similaire aux expériences de l'équipe de D'Anna [78, 96], on enregistre l'évolution temporelle de $\theta(t)$ pour un échantillon vibré, en l'absence de tout couple extérieur ($C_{ext} = 0$). Cette expérience permet de mettre en évidence l'effet des vibrations (sans cisaillement) sur le mouvement des grains. La figure 2.3 montre l'évolution temporelle $\theta(t)$ ainsi que le spectre de puissance correspondant $|\theta(\nu)|^2$ obtenus pour une suspension granulaire vibrée à $f = 20$ Hz, $A = 1622$ μm. Le spectre obtenu est similaire à celui de la Fig.1.21(a) : il évolue en ν^{-2}.

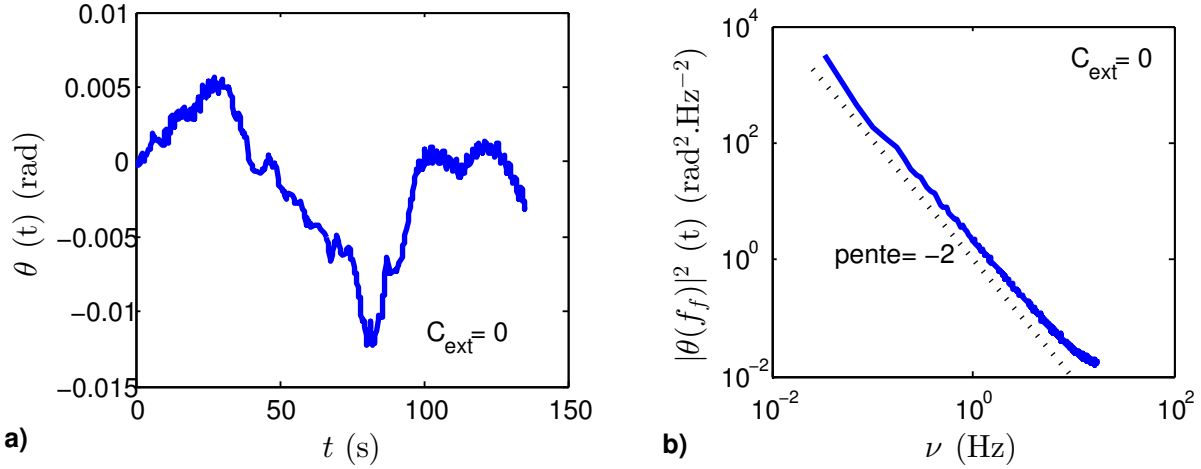


FIGURE 2.3 – a) Évolution temporelle de la déformation angulaire ($\theta(t)$) pour une suspension de billes de verre de 100 μm immergées dans un mélange Emkarox-eau de viscosité $\eta_f = 40$ mPa.s, soumise à des vibrations ($f = 40$ Hz, $A = 1622$ μm). b) Spectre de puissance des fluctuations angulaires obtenu par transformée de Fourier de la figure (a).

Marchal *et al.* [56] ont obtenu les mêmes résultats dans le cas de billes de verre seules avec le rhéomètre à poudre. Un bruit de mesure en ν^{-2} indique que le mouvement du vane effectue un processus de diffusion de type marche aléatoire dans l'échantillon. La suspension granulaire quant à elle explore différentes configurations sous l'effet des vibrations. En se reportant aux travaux de la littérature, les fluctuations du vane peuvent être attribuées à une agitation brownienne du milieu environnant [81, 96].

La question est : peut-on réaliser des mesures rhéologiques sachant que la déformation angulaire θ fluctue au cours du temps ? En effet, une telle mesure consiste à appliquer un couple C (nommé C_{ext} dans l'Eq.(2.2)) constant et à mesurer la vitesse de rotation angulaire $\dot{\theta}$ correspondante. Cette dernière doit être stable pour pouvoir être reliée au taux de cisaillement et donc mesurer une viscosité effective. Pour vérifier cette hypothèse, on propose de regarder l'évolution temporelle de la déformation angulaire en appliquant une contrainte de cisaillement, donc un couple extérieur ($C_{ext} \neq 0$), à notre suspension granulaire vibrée. La figure 2.4(a) indique que les valeurs de θ mesurées lors d'une mesure rhéologique ($C_{ext} \neq 0$) sont nettement supérieures aux fluctuations induites sur θ par les vibrations. Pour être convaincus, nous avons représenté en Fig.2.4(b) l'évolution temporelle de la vitesse angulaire $\dot{\theta}$. Elle fluctue au cours du temps mais sa moyenne reste stable. Expérimentalement, les mesures de viscosité sont prises en moyennant le signal sur 60 s. En Fig.2.4(b), les points verts représentent le signal moyenné sur des fenêtres de temps de 60 s. Le bruit induit par les vibrations est alors évalué à 10 %.

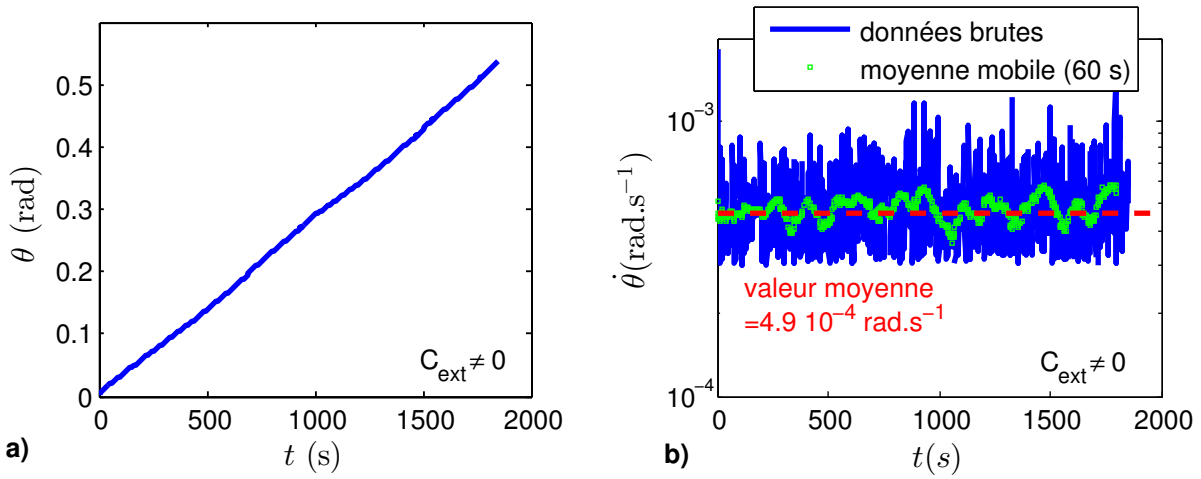


FIGURE 2.4 – a) Évolution temporelle de la déformation angulaire ($\theta(t)$) pour une suspension de billes de verre de 335 μm immergées dans un mélange Emkarox-eau de viscosité $\eta_f = 70$ mPa.s, soumise à des vibrations ($f = 50$ Hz, $A = 287$ μm) et à une contrainte de cisaillement de 1 Pa. b) Évolution temporelle de la vitesse de rotation angulaire pour le même système.

Paramètre de contrôle

Dans son étude sur les milieux granulaires secs vibrés, Marchal *et al.* [25] ont montré que le paramètre de contrôle pertinent était l'énergie de vibration E_v définie comme l'énergie injectée à l'échantillon via les vibrations. La cellule de mesure reliée au pot vibrant se comportant comme un oscillateur forcé, l'échantillon reçoit constamment de l'énergie mécanique, à l'instar d'un milieu moléculaire constamment soumis à de l'énergie thermique. L'échantillon oscille dans son ensemble à une certaine fréquence et amplitude tel un oscillateur harmonique non-amorti. Marchal *et al.* [25] définissent cette énergie de vibration E_v comme l'énergie cinétique d'un oscillateur harmonique de même masse m que l'échantillon. Les vibrations étant sinusoïdales, d'amplitude A et de fréquence f, $E_v = 1/2m(2\pi f)^2 A^2$. Dans le cadre des expériences présentées dans ce manuscrit, il nous a paru plus commode de travailler avec une contrainte de vibration σ_v pour pouvoir comparer son effet à la contrainte de cisaillement σ. Elle est définie comme l'énergie volumique de vibration, soit $\sigma_v = E_v/V$ avec V le volume de l'échantillon, ce qui donne explicitement :

$$\sigma_v = \frac{1}{2}\rho_s A^2 (2\pi f)^2 \tag{2.3}$$

Avec ρ_s la masse volumique du système défini par $\rho_s = \rho_p\phi + (1-\phi)\rho_f$ avec ρ_p et ρ_f la masse volumique des grains et du fluide respectivement, ϕ la fraction volumique en particules. L'unité de σ_v est le Pascal

(Pa).

Étalonnage

La contrainte de cisaillement σ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ sont obtenus à partir du couple C et de la vitesse de rotation angulaire $\dot{\theta}$ via des constantes d'étalonnage K_σ et $K_{\dot{\gamma}}$ telles que $\sigma = K_\sigma C$ et $\dot{\gamma} = K_{\dot{\gamma}}\dot{\theta}$. Que valent K_σ et $K_{\dot{\gamma}}$?

Rappelons que le système de mesure s'apparente à une cellule de Couette à entrefer large, de rayon extérieur R_e et de rayon intérieur R_i (Fig.2.5(a)). Considérons le système de coordonnées cylindriques ($\mathbf{e_r}$,$\mathbf{e}_\theta$,$\mathbf{e_z}$). La vitesse d'écoulement est dirigée suivant $\mathbf{e}_\theta$, tel que $\mathbf{v} = v_\theta(r,\theta,z)\mathbf{e}_\theta$. Par raison de symétrie et en l'absence de gradient de pression axial, $v_\theta = v_\theta(r)$. Les seules composantes non nulles du tenseur des contraintes et du tenseur des vitesses de déformation sont respectivement $\sigma_{r\theta} = \sigma$ et $\dot{\gamma}_{r\theta} = \dot{\gamma}$. Les constantes d'étalonnage sont alors déterminées par résolution de l'équation de conservation de la quantité de mouvement avec les conditions aux limites suivantes $v_\theta(r = R_i) = \dot{\theta}R_i$ et $v_\theta(r = R_e) = 0$. Pour se faire, il est également nécessaire de postuler une loi de comportement qui relie $\sigma_{r\theta}$ et $\dot{\gamma}_{r\theta}$ et de vérifier à postériori que la loi de comportement est juste. La loi la plus générale est la loi de puissance (loi d'Ostwald de Waele) définie par $\sigma_{r\theta} = k\dot{\gamma}_{r\theta}^n$ avec k l'indice de consistance et n l'indice d'écoulement. Pour $n = 1$, le fluide est newtonien. Pour $0 < n < 1$, le fluide a un comportement rhéofluidifiant. Pour $n > 1$, le fluide est rhéoépaississant. Sachant que le comportement de tout fluide peut toujours être approximé par une loi de puissance sur une gamme réduite de $\dot{\gamma}$, le choix de ce modèle n'est pas un facteur limitant. La résolution de ce problème se trouve dans de nombreux ouvrages, donnant ainsi lieu aux expressions suivantes :

$$K_\sigma(r) = \frac{1}{2\pi L r^2} \qquad \text{et} \qquad K_{\dot{\gamma}} = (2/n)\frac{(R_e/r)^{2/n}}{(R_e/R_i)^{2/n} - 1} \tag{2.4}$$

Avec r la position radiale dans l'entrefer.

Il reste cependant une inconnue dans l'expression de $K_{\dot{\gamma}}$, l'indice d'écoulement n. Aït Kadi *et al.* [97, 98] ont montré qu'il existait une région étroite autour d'une position r^* dans l'entrefer pour laquelle $K_{\dot{\gamma}}$ est quasiment indépendante de n. Sur la figure 2.5, cette région se situe à $r^*/R_e \simeq 0.58$. La valeur de r^* peut être déterminée analytiquement en la considérant comme l'intersection de deux courbes $K_{\dot{\gamma}}(r,n)$ et $K_{\dot{\gamma}}(r,n')$ avec n et n' deux valeurs extrêmes d'indice d'écoulement. La position r^*

est alors définie par :

$$r^* = \left[\frac{n'}{n} \frac{(R_e/R_i)^{2/n'} - 1}{(R_e/R_i)^{2/n} - 1} R_e^{(2/n-2/n')} \right]^{\frac{1}{2/n-2/n'}} \tag{2.5}$$

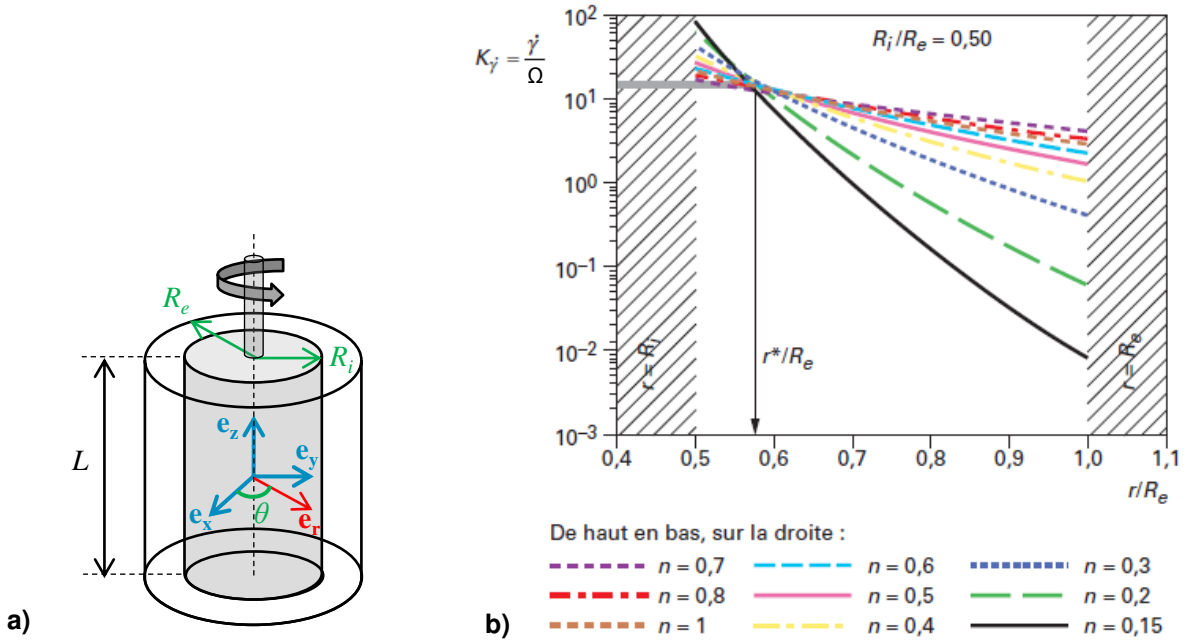


FIGURE 2.5 – a) Cellule de Couette. b) Constante d'étalonnage $K_{\dot\gamma}$ en fonction de la position dans l'entrefer avec r la position radiale et R_e le rayon du cylindre extérieur dans une cellule de Couette. D'après Choplin *et al.* [98].

Pour la cellule vibrante considérée ici, $R_i = 10$ mm, $R_e = 20$ mm, $n = 1$ et $n' = 0.15$, ce qui donne $r^* = 11.5$ mm ou encore $r^*/R_e = 0.575$ en accord avec la valeur de la figure 2.5(b). Le rayon du vane (R_i) étant de 10 mm, la position r^* est située à 1.5 mm du vane. Les facteurs géométriques obtenus sont $K_\sigma = 38580$ Pa.N^{-1}.m^{-1} et $K_{\dot\gamma}$ 2.037 rad^{-1}. Les grandeurs rhéologiques (σ, θ et $\dot\theta$) seront donc implicitement déterminés localement en $r = r^*$, à partir des mesures expérimentales du couple C et de la vitesse de rotation angulaire $\dot\theta$.

Cependant, on doit s'assurer que la zone au voisinage de r^* est cisaillée, pour n'importe quel indice de rhéofluidification, pour que les constantes d'étalonnage restent valables. La figure 2.6 représente les profils de vitesse obtenus pour différentes valeurs d'indices de rhéofluidification n. La zone $r = r^*$ étant située proche du cylindre intérieur fictif (à 1.5 mm), elle sera toujours cisaillée même pour un fluide très rhéofluidifiant ($n = 0.15$).

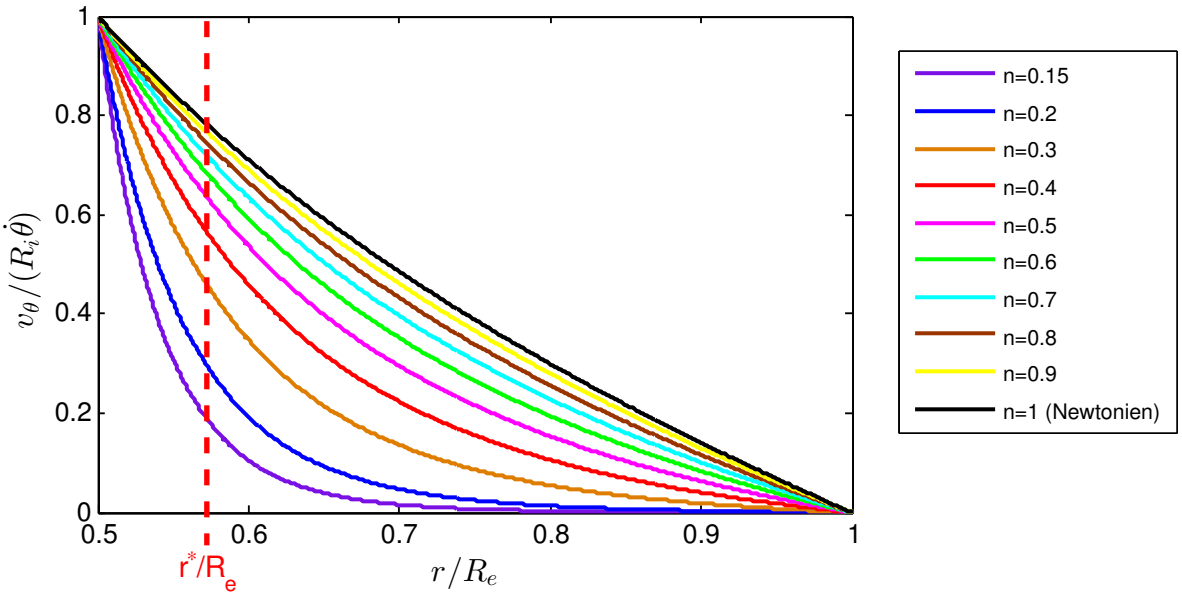


FIGURE 2.6 – Profils de vitesse théoriques adimensionnés dans une cellule de Couette : $v_\theta(r)/(R_i\dot{\theta})$ avec v_θ la vitesse dans l'entrefer, $\dot{\theta}$ la vitesse de rotation angulaire, R_i le rayon du cylindre intérieur, en fonction de r/R_e avec r la position radiale et R_e le rayon du cylindre extérieur.

2.2.2 Caractéristiques de la suspension granulaire

Les suspensions granulaires utilisées lors de nos expériences sont des suspensions modèles. Les grains utilisés sont des billes de verre sphériques et monodisperses (*Glass Microspheres* de *Whitehouse Scientific Ltd*) (Fig. 2.7). Différents diamètres de billes ont été utilisés : $d = 49 \pm 3$ μm, 100 ± 8 μm, $200 \pm 10\mu$m, $335 \pm 15\mu$m et $530 \pm 30\mu$m (incertitudes données par le fournisseur). La masse volumique ρ_p des billes est de 2400 kg.m^{-3}.

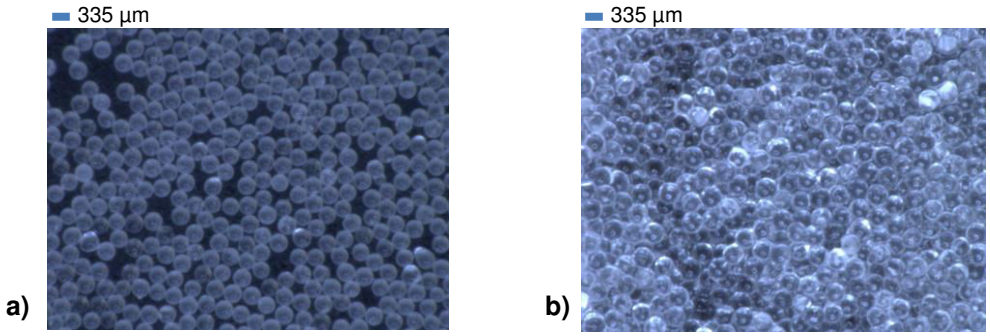


FIGURE 2.7 – Cliché microscopique de billes de verre de 335 μm de diamètre (a) seules. (b) immergées dans un mélange Emkarox-eau.

Le fluide dans lequel sont immergées les billes est de l'Emkarox HV45. Ce copolymère est constitué

de polypropylène glycole et de polyéthylène glycol. Soluble dans l'eau, on peut facilement le diluer dans de l'eau distillée pour obtenir différentes viscosités. Ce fluide reste newtonien même sous forme très visqueuse. Dans nos expériences, la viscosité varie de celle de l'eau à 800 mPa.s. Le tableau 2.1 donne la masse volumique de quelques mélanges Emkarox-eau ayant différentes valeurs de viscosité.

TABLE 2.1 – Viscosité à 20°C (η_f) et masse volumique (ρ_f) de différents mélanges Emkarox-eau.

η_f (mPa.s)	ρ_f (kg.m^{-3})
1	1000
13	1005
30	1019
68	1032
160	1043
600	1060

Avant d'expliquer la préparation de nos échantillons, revenons à la définition de fraction volumique. Dans la section 1.2.1.1, la fraction volumique de l'empilement ϕ est définie comme le volume des grains sur le volume de l'empilement, soit :

$$\phi = \frac{V_p}{V_{empilement}} = \frac{m_p/\rho_p}{SH} \tag{2.6}$$

Avec m_p la masse des billes de verre de masse volumique ρ_p, S la surface de la cellule contenant l'échantillon et H la hauteur de la surface libre de l'empilement.

Au cours des vibrations, le milieu a tendance à se compacter, à se tasser (1.4.1). Visuellement on voit que la hauteur de l'empilement H diminue au cours du temps pour une énergie de vibration donnée. Cette compaction se traduit par une augmentation de la fraction volumique de l'empilement au cours du temps. ϕ n'est donc pas un paramètre de contrôle facilement maitrisable. Pour palier ce problème, on propose de définir une fraction volumique globale, définie comme le rapport du volume des grains (V_p) sur le volume total ($V_T = V_p + V_{fluide}$), soit :

$$\phi_g = \frac{V_p}{V_p + V_{fluide}} = \frac{m_p/\rho_p}{m_p/\rho_p + m_f/\rho_f} \tag{2.7}$$

Avec m_p et V_p la masse et le volume des billes de masse volumique ρ_p, m_f et V_{fluide} la masse et le volume du fluide interstitiel de masse volumique ρ_f.

Le volume de fluide est est tel que ϕ_g soit compris entre 0.56 et 0.64 [9]. Dans le cas où le volume de

9. Le volume de fluide varie entre 78 % et 56 %du volume des grains pour $\phi = 0.56$ et $phi = 0.64$ respectivement.

fluide est égal au volume des interstices, $\phi_g = \phi$. Autour de $\phi \approx 0.6$, les suspensions sont proches du packing de telle sorte que $\phi_g = \phi$ mais nous pouvons considérer qu'elles sont quasiment homogènes.

Comme, pour un échantillon donné, les valeurs de m_p et m_f sont constantes, ϕ_g ne dépend pas du temps. De plus, ϕ_g se détermine simplement par pesée des grains et du fluide, c'est donc un paramètre de contrôle parfaitement maîtrisable. Ne perdons pas de vue que ϕ_g ne représente pas la fraction volumique à l'échelle locale de notre échantillon. Cependant, les suspensions granulaires modèles sont denses ($\phi_g = 0.61$) et nous allons voir que le mode opératoire utilisé pour les préparer permet d'obtenir une fraction volumique stationnaire ϕ proche de ϕ_g. Le terme « stationnaire » signifie que la fraction volumique n'évolue pas (ou tout du moins très peu) au cours du temps pour une contrainte de vibration donnée.

En reprenant l'analyse dimensionnelle proposée en section 1.3.1, les suspensions granulaires modèles étudiées sont :

- gravitationnelles ($\rho_p > \rho_f$)
- denses ($\phi \approx 0.60$)
- non browniennes ($Pe_{\dot{\gamma}} >> 1$)

Parmi les nombres sans dimensions évoqués dans le chapitre bibliographique, il nous reste le nombre de Reynolds particulaire. Généralement, ce nombre est basé sur la vitesse caractéristique des particules sous l'effet de l'écoulement de cisaillement. Il est possible de donner une autre définition de ce nombre en présence de vibrations, avec une vitesse des particules proportionnelle à la vitesse de la cuve cylindrique, i.e. $A(2\pi f)$ avec A et f respectivement l'amplitude et la fréquence des vibrations. Le nombre de Reynolds particulaire s'écrit alors :

$$Re_p = \frac{\Delta\rho A(2\pi f)d}{\eta_f} \tag{2.8}$$

Avec $\Delta\rho = \rho_p - \rho_f$ la différence de masse volumique, A et f l'amplitude et la fréquence des vibrations respectivement, d le diamètre des billes, η_f la viscosité du fluide interstitiel.

Ce nombre compare l'effet des forces d'inertie sous vibrations ($\Delta\rho A^2(2\pi f)^2 d^3$) par rapport aux forces visqueuses ($\eta_f A(2\pi f)d^2$) à l'échelle du grain. Nous verrons que le comportement rhéologique de la suspension granulaire dépend de Re_p. Dans le cas $Re_p < 1$, les effets visqueux dominent, dans le cas $Re_p > 1$, les effets inertiels dominent.

2.2.3 Préparation des échantillons

Les suspensions granulaires sont préparées avec une fraction volumique globale ϕ_g de 0.61. La masse de billes de verre est fixée à 132 g, ce qui nécessite une masse de fluide de 36.3 g pour un fluide de viscosité 68 mPa.s par exemple ($\rho_f = 1032$ kg.m^{-3}) (Table 2.1). Expérimentalement, on place d'abord le fluide dans la cellule de mesure et on ajoute ensuite les billes de verre. Les particules sont mélangées à l'aide d'une spatule. La suspension granulaire ainsi formée est soumise à une forte énergie de vibration ($f = 50$ Hz, $A = 400$ μm) pendant 10 min, puis à la vibration désirée pendant une minute avant de faire la mesure expérimentale. Ce procédé permet d'enlever les bulles coincées dans la suspension lors du mélange et d'atteindre une fraction volumique stationnaire de l'empilement. En effet, Kabla *et al.* [89] ont montré que l'application de tapes fortes puis de tapes faibles à une suspension granulaire permettait d'atteindre un état stationnaire. Pour s'en convaincre, nous avons mené une étude, indépendamment du rhéomètre à poudre, sur la dynamique de compaction sous l'effet des vibrations uniquement. Les effets de la viscosité du fluide, de la taille des billes et de l'énergie injectée au système ont été analysés en détails. Les résultats obtenus sont présentés tels qu'ils ont été soumis à *European Physical Journal B* (2014) (Annexe B).

Pour se faire, l'échantillon est disposé dans une cuve cylindrique reliée au même pot vibrant que celui du rhéomètre. L'expérience consiste à suivre la hauteur de la surface libre de l'empilement h au cours du temps grâce à une caméra et une lumière blanche. Connaissant la masse de billes m_p et la surface de la cellule S, il est possible de déterminer ϕ (Eq.(2.6)) à chaque instant. Nous nous sommes donc intéressés à l'évolution de ϕ au cours de notre protocole expérimental (Fig. 2.8(a)). A l'état initial, la fraction volumique de l'empilement vaut $\phi = 0.611$, ce qui est quasiment égal à ϕ_g fixée à 0.61. Ceci n'est pas surprenant puisque la préparation est dans un état dense (photo de gauche sur la Fig. 2.8(b)). Il y a très peu de fluide au dessus de la surface libre de l'empilement. A $t = 10$ s, l'échantillon est soumis à une forte énergie de vibration ($f = 50$ Hz, $A = 400$ μm) et ceci pendant 10 min. Une fois le régime transitoire dépassé ($t \simeq 100$ s), ϕ évolue rapidement et linéairement avec le temps, puis évolue plus lentement, de façon logarithmique (le régime logarithmique est très court ici). Sur la photo du milieu de la Fig. 2.8(b), il est clair que le milieu s'est tassé. On constate également que des bulles sont remontées à la surface. A $t = 610$ s, l'échantillon est soumis à une énergie de vibration beaucoup plus faible que celle utilisée pendant 10 min, énergie à laquelle nous voulons connaitre les caractéristiques du système. Dans l'exemple de la Fig. 2.8(a), la fréquence est de 80 Hz et l'amplitude de 15 μm. On constate alors que ϕ arrête d'augmenter et stagne à une valeur d'environ 0.624. En effet,

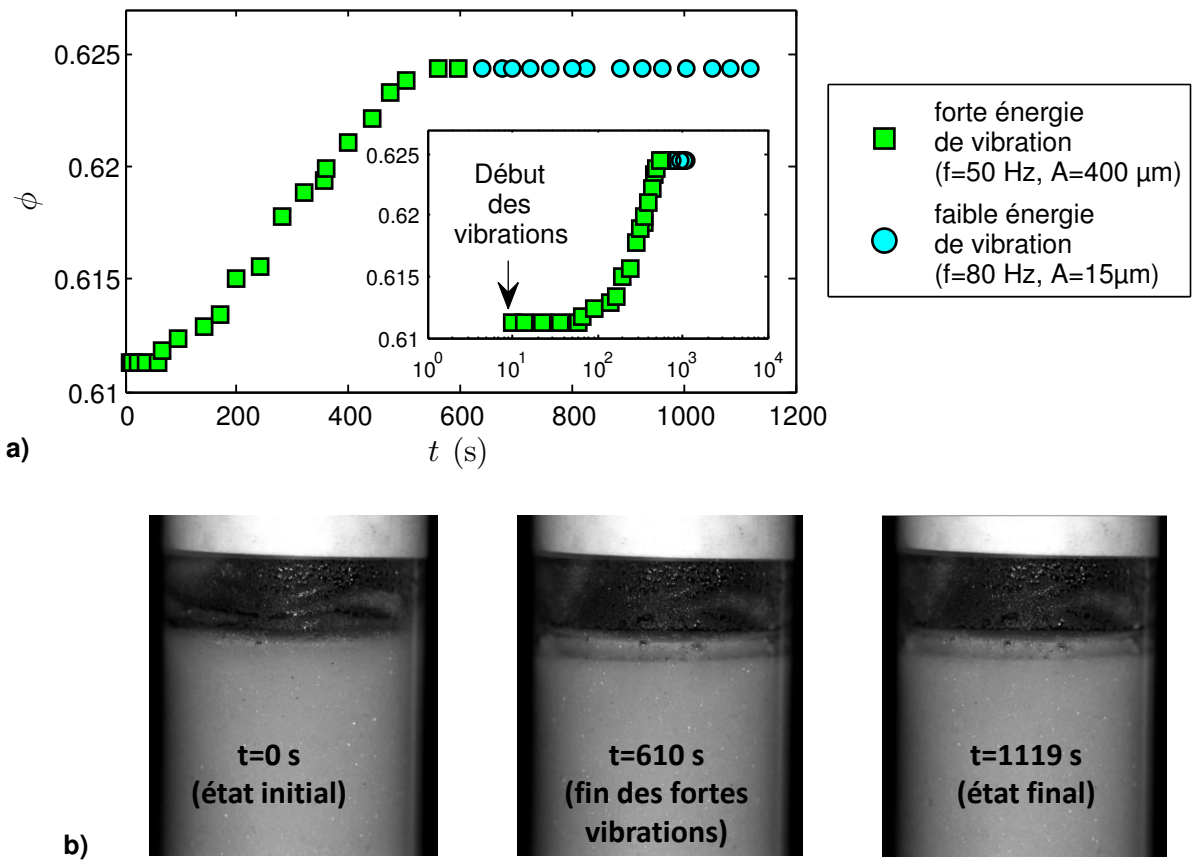


FIGURE 2.8 – a) Évolution temporelle de la fraction volumique ($\phi(t)$) (Eq.(2.6)), pour des billes de verre de 100 μm immergées dans un fluide de viscosité 180 mPa.s. Le système est soumis à une forte énergie de vibration ($f = 50$ Hz, $A = 400$ μm) pendant 10 min puis à une énergie plus faible (ici $f = 80$ Hz, $A = 15$ μm) correspondant aux conditions expérimentales désirées. b) Photos de l'échantillon prises à différents temps de l'expérience de compaction.

sur la figure 2.8(b), on voit que la surface libre de l'empilement n'a pas bougé entre la fin des fortes vibrations et l'état final.

L'étude de compacité présentée ici montre clairement que les mesures sont réalisées dans un état stationnaire de l'empilement. L'écart entre la fraction volumique de l'empilement finale et la fraction volumique globale est raisonnable. Ce faible écart entre ϕ_g et ϕ provient du fait que la suspension granulaire est préparée dans un état initialement dense, le volume de fluide est quasiment égal au volume des interstices. Les expériences sont également réalisées avec une faible énergie de vibration ce qui permet à l'échantillon de rester dans un état stationnaire. Le vieillissement de la suspension granulaire a un temps caractéristique très long devant la période des vibrations et devant le temps de mesure rhéologique. Le fait de prendre en compte une fraction volumique globale comme paramètre

de contrôle n'est donc pas absurde.

Résumé :

Le rhéomètre à poudre qui n'est autre qu'un rhéomètre classique couplé à une cellule vibrante permet de reproduire le mouvement brownien à l'échelle macroscopique dans les échantillons. Les vibrations appliquées au matériau sont quantifiables par une contrainte de vibration $\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$. La viscosité est déterminée localement, en un point $r = r^*$ qui se trouve dans une zone cisaillée.

Les suspensions granulaires étudiées sont des milieux modèles constitués de billes de verre d'une centaine de micromètres immergées dans un fluide newtonien. Les suspensions sont gravitationnelles ($\rho_p > \rho_f$), denses et non browniennes.

La proportion de billes de verre par rapport à la proportion de fluide est déterminée par une fraction volumique globale définie par pesée des grains et du fluide, soit :

$$\phi_g = \frac{V_p}{V_p + V_{fluide}} = \frac{m_p/\rho_p}{m_p/\rho_p + m_f/\rho_f} \tag{2.9}$$

Avec m_p et V_p la masse et le volume des billes, m_f et V_{fluide} la masse et le volume du fluide interstitiel.

Cette fraction volumique a l'avantage d'être constante et maitrisable. Dans le régime dense, ϕ_g est proche de la fraction volumique de l'empilement définie par le rapport du volume des billes sur le volume de l'empilement.

2.3 Comportement rhéologique en régime permanent

Dans cette section, on s'intéresse à la réponse rhéologique des suspensions granulaires en présence et en l'absence de vibrations en régime permanent, i.e. pour des valeurs stationnaires de la contrainte σ et du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$. L'objectif des mesures rhéométriques est d'analyser le comportement de la viscosité effective de cisaillement (égal au rapport $\sigma/\dot{\gamma}$) de la suspension granulaire vibrée, en fonction de l'amplitude et de la fréquence des vibrations, de la viscosité du fluide interstitiel et de la taille des billes. Étant donné que les vibrations permettent de reproduire un mouvement brownien d'origine mécanique dans ces milieux athermiques, jusqu'où peut on pousser cette analogie ? Le comportement des suspensions granulaires vibrées est il analogue aux suspensions classiques browniennes de sphères dures ?

2.3.1 Effet des vibrations sur le comportement rhéologique

Expérimentalement, les courbes d'écoulement réalisées en présence de vibrations sont obtenues en imposant des échelons de contrainte de 1 à 1000 Pa durant 60 s. Les valeurs des taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ mesurés en régime permanent varient entre 10^{-4} et 500 s^{-1}. En l'absence de vibration, les données ont été obtenues à taux de cisaillement imposé [10] avec des échelons de 120 s afin d'obtenir des valeurs stationnaires. Dans cette étude rhéologique, la fréquence des vibrations varie entre 5 et 80 Hz, l'amplitude entre 50 et 900 μm.

La figure 2.9(a) représente l'évolution de la viscosité de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement appliquée, pour une suspension de billes de verre de 100 μm immergées dans un fluide de viscosité 67.8 mPa.s, soumise à différentes contraintes de vibration σ_v.

Comportement de la suspension granulaire en l'absence de vibration ($\sigma_v = 0$ Pa)

En l'absence de toute vibration ($\sigma_v = 0$ Pa), on retrouve le comportement de fluide à seuil observé par d'autres auteurs (section 1.2.3.1). En effet, le système ne s'écoule que si la contrainte de cisaillement est supérieure à la contrainte seuil qui n'est autre que la contrainte frictionnelle σ_f. Ce comportement est caractéristique d'une instabilité, l'instabilité de stick slip. Nous avons vu au chapitre précédent que ce régime frictionnel était attribué à une localisation de l'écoulement. Les bandes de cisaillement se comportent alors comme des surfaces de glissement, auxquelles nous pouvons appliquer la loi de

10. En l'absence de vibration, il est nécessaire de réaliser des courbes d'écoulement en imposant le taux de cisaillement et non la contrainte de cisaillement, du fait de l'instabilité de stick slip. La réponse en contrainte de cisaillement est alors stationnaire.

Coulomb (Eq.(1.8)) afin d'avoir un estimation de cette contrainte frictionnelle σ_f. On remarquera que σ_f est une contrainte macroscopique qui résulte du frottement de couches adjacentes de billes de verre et non une contrainte locale prenant en compte le frottement entre deux particules. La loi de Coulomb est définie par $\sigma_f = \mu P_g$ (Eq.(1.7)) avec μ le coefficient de friction et P_g la pression granulaire moyenne définie par :

$$P_g = \Delta\rho\phi g \frac{1}{L}\int_{z_0}^{z_0+L} z\,\mathrm{d}z = \Delta\rho\phi g \frac{L+2z_0}{2} = \Delta\rho\phi g\bar{z} \tag{2.10}$$

Avec $\Delta\rho = \rho_p - \rho_f$ la différence de masse volumique entre le fluide et les billes de verre, ϕ la fraction volumique, g la constante gravitationnelle, L la hauteur du vane et z_0 la distance entre la surface libre de l'échantillon et le vane (Fig. 2.2(a)). Dans le cas présent, $\bar{z} = 0.025$ m, $\phi = \phi_g = 0.61$, $\mu = [0.4; 0.6]$, ce qui donne $\sigma_f = 103 \pm 22$ Pa. Cette valeur est en accord avec la valeur expérimentale d'environ 120 Pa (Fig. 2.9(a)).

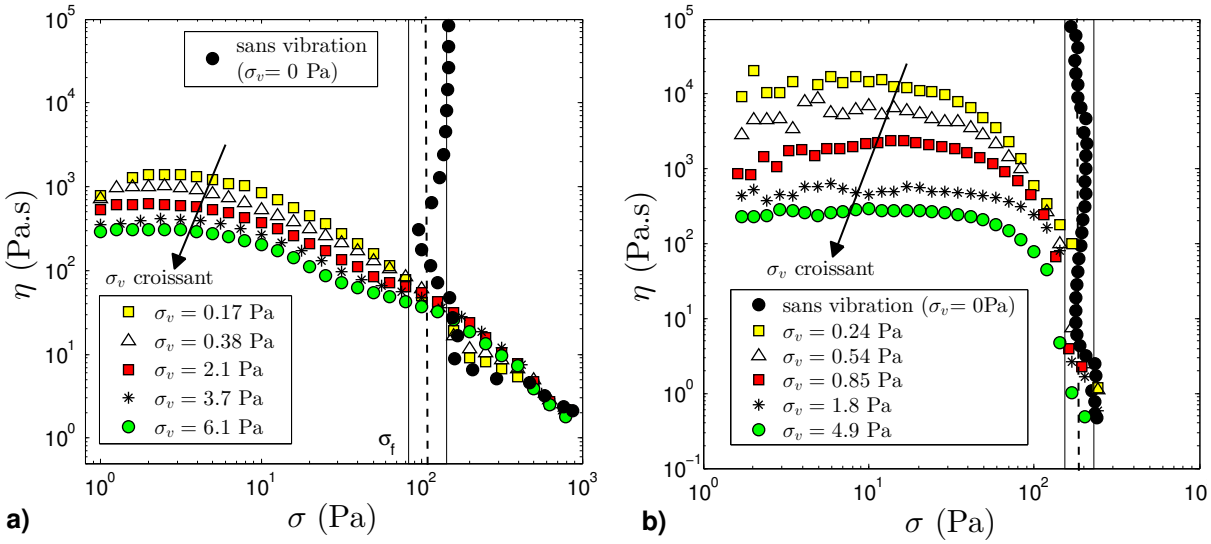


FIGURE 2.9 – Viscosité (η) en fonction de la contrainte de cisaillement (σ), pour différentes valeurs de contraintes de vibration (σ_v), a) pour des billes de verre de 100 μm immergées dans un fluide de viscosité $\eta_f = 67.8$ mPa.s. b) pour des billes de verre seules de 100 μm. Le rectangle représente la gamme de valeurs obtenues par application de la loi de Coulomb (Eq.(1.8)) pour l'estimation de la contrainte frictionnelle σ_f.

Les travaux présentés dans la littérature ont montré que la viscosité de la suspension tendait vers un régime newtonien à haut cisaillement (section 1.2.3.1). Les conditions expérimentales dans lesquelles ont été réalisés les rhéogrammes (η, σ) ne permettent pas de prétendre à l'observation d'une viscosité constante à haut cisaillement à cause des limites inertielles du rhéomètre. Pour une plus faible valeur de viscosité, par exemple $\eta_f = 4.9$ mPa.s, il est possible d'observer un début de ce plateau newtonien.

Le problème semble provenir d'une fracturation de la suspension granulaire, créant un « trou »autour du vane (Fig.2.10), ce qui rend impossible toute mesure à haute vitesse de cisaillement. Autant dire que les phénomènes de rhéoépaississement sont clairement inobservables.

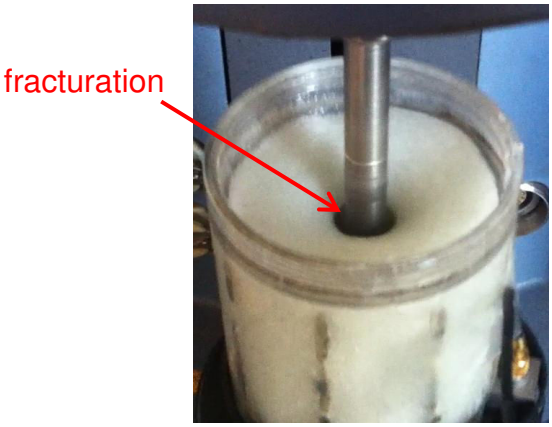


FIGURE 2.10 – Photo d'une suspension granulaire modèle composée de billes de verre de 335 μm immergées dans un mélange Emkarox-eau de viscosité $\eta_f = 70$ mPa.s, vibrée à $f = 50$ Hz, $A = 287$ μm et soumise à une forte contrainte de cisaillement ($\sigma = 600$ Pa).

Dans le cas d'un milieu granulaire sec, constitué uniquement de billes de verre, le régime est purement frictionnel coulombien (Fig. 2.9(b)), comme précédemment montré par Marchal *et al.* [25]. La contrainte frictionnelle peut être évaluée par la loi de Coulomb $\sigma_f = \mu P_g$ (Eq.(1.8)), avec P_g la pression granulaire définie par l'Eq.(2.10). En prenant $\mu = [0.4; 0.6]$, $\phi = 0.62$, cette loi donne $\sigma_f = 182$ $\pm$ 41 Pa, ce qui est en accord avec la valeur expérimentale d'environ 180 Pa (Fig. 2.9(b)). La contrainte frictionnelle est plus grande que dans le cas saturé du fait que la différence de masse volumique entre l'air et les billes est beaucoup plus grande qu'entre l'Emkarox et les billes. En effet, le rapport des valeurs expérimentales obtenues dans le système billes-air (σ_{fair}) et dans le système billes-Emkarox (σ_{femka}) conduit à $\frac{\sigma_{fair}}{\sigma_{femka}} \approx \frac{180}{120} \approx 1.5$, ce qui est proche des rapport des masses volumiques égal à $\frac{\Delta\rho_{air}}{\Delta\rho_{emka}} \approx \frac{2400}{1360} \approx 1.7$.

Comportement de la suspension granulaire en présence de vibrations ($\sigma_v \neq 0$ Pa)

Intéressons nous désormais aux courbes d'écoulement sous vibrations ($\sigma_v \neq 0$). Sur la figure 2.9(a), il existe une transition de régime à $\sigma = \sigma_f$ avec σ_f la contrainte frictionnelle entre un régime dominé par les vibrations ($\sigma < \sigma_f$) et un régime dominé par l'écoulement de cisaillement ($\sigma > \sigma_f$). Pour $\sigma < \sigma_f$, les vibrations suppriment la contrainte seuil du matériau et font apparaitre un plateau newtonien de viscosité η_0. D'un point de vue macroscopique, le système passe d'un état « frictionnel » à un état

« visqueux » sous l'effet des vibrations. La valeur de η_0 dépend de l'énergie fournie au système, telle que η_0 diminue quand σ_v augmente. La source de vibrations joue en quelque sorte le rôle d'un thermostat. Dans des milieux soumis au mouvement brownien d'origine thermique, les particules sont d'autant plus agitées que la température est élevée. Dans le cas de suspensions granulaires vibrées, l'énergie mécanique injectée dans le système induit une mobilité des particules et les particules sont d'autant plus agitées que l'énergie est grande, ce qui se traduit par une chute de viscosité. Ce phénomène a déjà été observé pour des billes de verre sèches, comme l'atteste la figure 2.9(b) [25]. A bas cisaillement, le système passe d'un régime frictionnel coulombien à un régime newtonien de viscosité η_0 sous l'effet des vibrations, où η_0 diminue quand σ_v augmente.

Pour $\sigma > \sigma_f$, l'effet de l'écoulement de cisaillement prédomine sur celui des vibrations. Toutes les courbes d'écoulement réalisées à différentes valeurs de σ_v se confondent avec celle réalisée en l'absence de vibrations. L'écoulement de cisaillement devient plus efficace que les vibrations en termes de réorganisation granulaire. Le système présente alors un comportement rhéofluidifiant, indépendamment de la contrainte de vibration appliquée. Le rhéogramme devrait alors tendre vers un plateau newtonien à haut cisaillement mais il n'est pas observable pour les mêmes raisons citées précédemment. On notera que ce second régime d'écoulement est absent dans le cas sec (Fig.2.9(b)). Pour des billes de verre seules, lorsque la contrainte devient égale à $\sigma = \sigma_f$, les rhéogrammes réalisées pour différentes valeurs de σ_v rejoignent le régime frictionnel coulombien.

2.3.2 Effet du fluide interstitiel sur le comportement rhéologique d'une suspension granulaire vibrée

Cette transition de régime bas cisaillement-haut cisaillement apparait également clairement quand on trace les courbes d'écoulement pour différentes valeurs de viscosité du fluide interstitiel, pour une contrainte de vibration donnée (Fig. 2.11). Pour $\sigma < \sigma_f$, la viscosité de la suspension diminue quand celle du fluide interstitiel augmente alors que le comportement est inversé dans le domaine $\sigma > \sigma_f$. On peut également constater que toutes les courbes d'écoulement se croisent en un même point, i.e. pour une même valeur de contrainte qui n'est autre que la contrainte frictionnelle $\sigma_f \approx 100$ Pa, et une même valeur de viscosité qu'on notera η_c environ égale à 80 Pa. Les deux quantités sont reliées par un taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ tel que $\sigma_f = \eta_c \dot{\gamma}_c$. L'ordre de grandeur de $\dot{\gamma}_c$ est de l'ordre de l'unité. Comme σ_f et η_c ne dépendent pas de la viscosité du fluide interstitiel η_f, on en déduit que $\dot{\gamma}_c$ ne dépend pas non plus de η_f. Ce point critique correspond également à la transition frictionnelle-

visqueuse observée en l'absence de vibration. Huang *et al.* [21] ont montré que $\dot{\gamma}_c$ était inversement proportionnel à la viscosité du fluide interstitiel. Nos résultats diffèrent donc de ceux obtenus par ces auteurs. Cette différence peut provenir du fait que leur système est isodense alors que les billes de verre que nous utilisons ici sont plus denses que le fluide. Dans notre cas, les billes sont en contact les unes avec les autres.

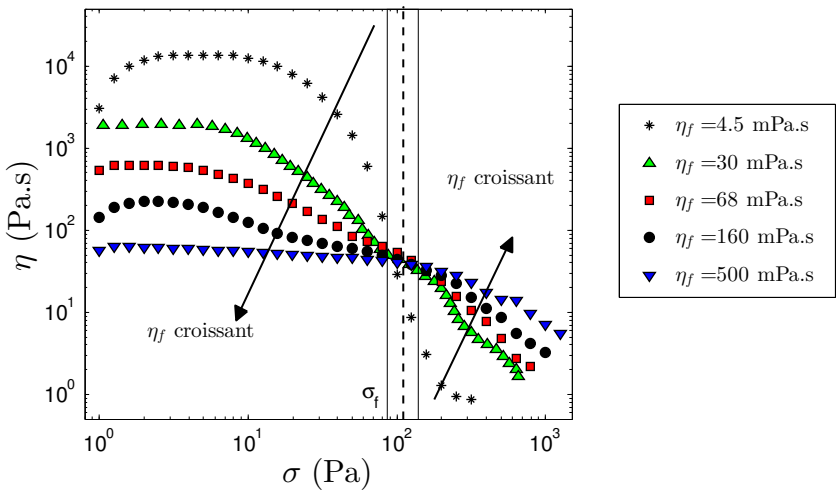


FIGURE 2.11 – Viscosité (η) en fonction de la contrainte de cisaillement (σ), pour différentes valeurs de viscosités de fluide (η_f), pour des billes de 100 μm immergées dans un fluide et vibrées à $\sigma_v = 6.1$ Pa. Le rectangle représente la gamme de valeurs obtenue par application de la loi de Coulomb (Eq.(1.8)) pour l'estimation de la contrainte frictionnelle σ_f.

Revenons sur l'influence du fluide interstitiel sur la viscosité de la suspension. Pourquoi l'effet est inversé entre le régime $\sigma < \sigma_f$ et $\sigma > \sigma_f$ (Fig.2.11) ? Nous proposons d'analyser en détails par la suite chaque régime d'écoulement. Nous pouvons d'ores et déjà dire que la différence de comportement provient des forces en présence. Dans cette étude, les forces qui nous intéressent sont les forces d'interactions hydrodynamiques fluide-particule et particule-particule (contacts lubrifiées) et les interactions de contact frictionnel. La prédominance d'une force par rapport à une autre est liée à la nature du mouvement des grains qui est différent suivant la sollicitation prédominante, i.e. vibrations ou cisaillement.

Pour $\sigma < \sigma_f$, le comportement de la suspension granulaire est contrôlé par les vibrations. Dans un milieu granulaire dense, les grains sont encagés par leurs plus proches voisins. Sous vibrations, les billes bougent à l'intérieur de leur cage et en sortent aux temps longs lorsqu'une ouverture le permet. Les particules sont donc séparées par une fine couche de fluide et ils interagissent par des contacts lubrifiés. En section 1.2.2.3, nous avons vu que la force de lubrification tend à repousser les particules.

Pour qu'il y ait contact, il faut une force supplémentaire qui vienne contrer cet effet répulsif. Dans le cas présent, ce rôle sera joué par la pression granulaire P_g. Le régime à bas cisaillement sera donc contrôlé par une compétition entre forces de lubrification et forces frictionnelles.

Pour $\sigma > \sigma_f$, le comportement de la suspension granulaire est contrôlée par l'écoulement de cisaillement. Le mouvement des billes s'effectue essentiellement par des sorties de cage au rythme du taux de cisaillement. La distance entre les billes devient plus importante de telle sorte que les interactions hydrodynamiques fluide-particule l'emportent sur les interactions de contact (lubrifié). Le régime à haut cisaillement sera donc contrôlé par une compétition entre dissipation visqueuse et force frictionnelle.

La transition à $\sigma = \sigma_f$ entre un régime dominé par les vibrations à bas cisaillement et un régime dominé par l'écoulement de cisaillement lui-même à haut cisaillement peut s'interpréter comme une transition entre un régime dominé par les forces de lubrification entre grains et un régime dominé par la dissipation visqueuse. En l'absence de vibration, ce point $\sigma = \sigma_f$ marque la transition entre un régime frictionnel et un régime visqueux. Ce point de transition peut alors être vu comme un point d'équilibre entre la force de lubrification, la force frictionnelle et la force visqueuse.

2.3.3 Régime d'écoulement dominé par l'écoulement de cisaillement

Dans le régime $\sigma > \sigma_f$, l'énergie injectée au système provient essentiellement de l'écoulement de cisaillement. Le comportement de la suspension granulaire vibrée est analogue à celui d'une suspension granulaire non vibrée. Nous pouvons donc reprendre les travaux de la littérature vus au Chapitre 1 dans le régime visqueux. A haut cisaillement, la suspension granulaire modèle se comporte alors comme une suspension homogène de sphères dures classique [21, 27, 28]. Pour vérifier cette affirmation, analysons la viscosité de la suspension pour une contrainte de cisaillement, par exemple 300 Pa, notée η_{300}.

La figure 2.12(a) confirme que la viscosité de la suspension η_{300} est proportionnelle à η_f, indépendamment de la taille des billes. Dans ce régime, le comportement rhéologique du système est donc pleinement contrôlé par la dissipation visqueuse. Une particule suspendue dans un fluide perturbe l'écoulement de ce fluide et génère un supplément d'énergie par frottement visqueux. Cette dissipation est d'autant plus grande que la viscosité du fluide suspendant est importante (Fig.2.12(a)) ou que la concentration en particules augmente comme nous allons le voir. On peut donc représenter la viscosité relative, i.e. le rapport de la viscosité de la suspension (η_{300}) et de celle du fluide (η_f), en fonction de la fraction volumique globale ϕ_g (2.12(b)). Étant donné que $\eta_{300} \propto \eta_f$, les points devraient

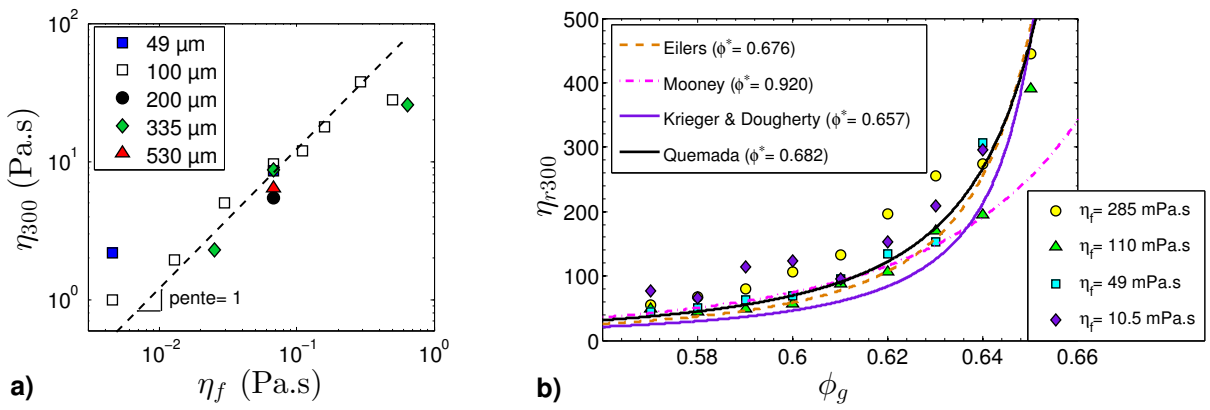


FIGURE 2.12 – a) Viscosité de la suspension mesurée à une contrainte $\sigma = 300$ Pa (η_{300}) en fonction de la viscosité du fluide (η_f) pour des billes de verre de différents diamètres immergées dans un fluide à une fraction volumique globale $\phi_g = 0.61$. b) Viscosité relative ($\eta_{r300} = \eta_{300}/\eta_f$) en fonction de la fraction volumique globale (ϕ_g), pour des billes de verre de 100 μm immergées dans différents mélanges Emkarox-eau de différentes viscosités. Les lignes matérialisent l'ajustement des données par les modèles du tableau 1.1.

former une seule courbe maitresse. Cet effet n'apparait pas clairement à cause des difficultés expérimentales (localisation, migration sous cisaillement). On constate que la viscosité augmente avec la fraction volumique et qu'elle diverge autour de 0.65. Ce point singulier correspond à la fraction volumique d'entassement maximal. L'allure de la courbe est similaire à celle observée pour des suspensions concentrées de sphères dures (Fig.1.18). Différents modèles existent pour décrire les comportements viscosité-fraction volumique. Sur la figure (2.12(b)), les données expérimentales ont été ajustées par les modèles de viscosité présentés en section 1.3.2. Le modèle de Quemada [71] semble le plus pertinent, avec $\phi^* = 0.682$ [11]. Cette valeur est intermédiaire entre celle obtenue au repos (0.63) et sous cisaillement infini (0.72) [64]. Néanmoins, ce qui est important est l'évolution des paramètres issus de l'ajustement du modèle en fonction des données du problème. Notons qu'il n'est pas possible d'obtenir des points expérimentaux fiables en dessous de $\phi_g = 0.57$. La présence d'un surnageant important pour les faibles valeurs de ϕ_g influence grandement les mesures rhéologiques.

2.3.4 Régime d'écoulement dominé par les vibrations

L'analyse du comportement rhéologique de la suspension granulaire dans le régime $\sigma < \sigma_f$ est beaucoup plus riche. Dans ce régime, l'énergie injectée au système provient essentiellement des vibra-

11. Dans les modèles présentés dans la section 1.3.2, la fraction d'entassement maximal ϕ_m est égale (ou très proche) de $\phi_{rcp} \approx 0.64$. Dans le cadre de nos suspensions granulaires, la fraction volumique d'entassement maximal est plus importante du fait de la présence des vibrations. Dans le cas présent, elle devient un paramètre ajustable que nous noterons ϕ^*.

tions qui font apparaitre un plateau newtonien de viscosité η_0. Les mesures expérimentales de η_0 sont plus faciles à obtenir car on atteint rapidement des valeurs stationnaires de σ et $\dot{\gamma}$ (au bout de 40 s). De plus, les mesures sont reproductibles, ce qui n'était pas forcément le cas en l'absence de vibrations due fait de l'instabilité de stick slip. On voit donc ici tout l'intérêt d'avoir recours aux vibrations pour étudier les milieux granulaires. Par ailleurs, nous verrons au Chapitre 3 que les hétérogénéités dues au cisaillement comme la localisation ou la migration ne semblent pas être à l'origine de ce comportement newtonien à faible cisaillement (contrairement au cas sans vibration (section 1.2.3.1)).

L'observation d'un comportement newtonien traduit, à l'échelle macroscopique, l'existence d'un mouvement erratique à l'échelle des grains, mouvement induit par les vibrations. η_0 diminue quand l'énergie injectée dans le système augmente, comme dans le cas sec. Mais quel est le lien entre η_0 et σ_v ? La figure 2.13(a) représente l'évolution de η_0 en fonction de σ_v pour des différentes tailles de billes (à η_f fixée). Pour n'importe quelle taille de billes considérée, η_0 évolue en $1/\sqrt{\sigma_v}$, autrement dit η_0 est inversement proportionnelle à la vitesse de la cellule de mesure, i.e. $A(2\pi f)$. Cependant, σ_v n'est pas le seul paramètre de contrôle puisqu'il existe non seulement une dépendance avec la taille des billes (Fig. 2.13(a)) mais aussi avec la viscosité du fluide (Fig.2.11). Notons que la viscosité était indépendante de la taille des billes dans le régime à haut cisaillement. Cette différence peut s'expliquer par la nature des forces en présence : lubrifiées à bas cisaillement, hydrodynamiques à haut cisaillement.

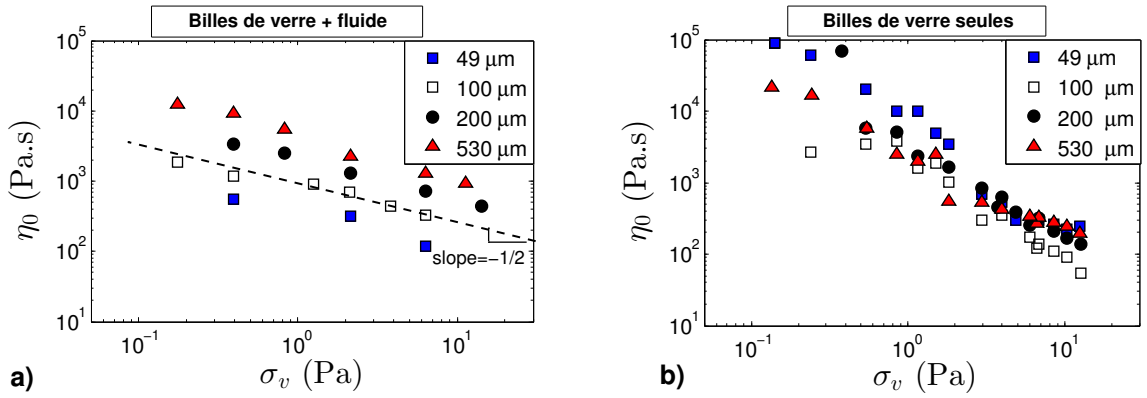


FIGURE 2.13 – Viscosité au plateau (η_0) en fonction de la contrainte de vibration (σ_v), pour des billes de verre de différentes tailles a) immergées dans un fluide de viscosité 68 mPa.s. b) sèches [25].

Dans le cas sec, Marchal *et al.* [25] ont montré que, sous vibrations, les interactions interparticulaires pouvaient être décrites localement par une approche hookéenne du type $\sigma_{dry} = G\gamma$ avec G le module élastique et γ la déformation. Le comportement du matériau ne dépend donc pas de la taille des billes, comme le confirme la figure 2.13(b).

Dans le cas saturé, la loi de Hooke ne permet pas d'expliquer les effets de taille de bille ou de viscosité de fluide. Intéressons nous plutôt aux forces de lubrification. Dans la section 1.2.2.3, la force de lubrification entre deux billes séparées d'une distance h, se rapprochant à une vitesse $\dot{h}$, est définie par $F_{lub} = \frac{3\pi}{8}\eta_f d^2\dot{h}/h$. Dans notre cas, les billes se rapprochent sous l'effet des vibrations, la vitesse de rapprochement est donc proportionnelle à la vitesse de la cellule soit $\dot{h} \propto A(2\pi f)$. En supposant que $h \propto d$, $F_{lub} \propto \eta_f d(2\pi f)$ et la contrainte de lubrification $\sigma_{lub} \propto F_{lub}/d^2$ vaut :

$$\sigma_{lub} \propto \frac{\eta_f A(2\pi f)}{d} \tag{2.11}$$

La viscosité de la suspension η_0 varie alors en $1/\sigma_{lub}$. Cette relation implique que η_0 augmente quand la taille des billes augmente, ce qui est effectivement le cas sur la figure 2.13(a). η_0 doit également diminuer quand η_f augmente, comme observé sur la figure 2.11.

La figure 2.14(a) est un résumé de tous les effets vus jusqu'à maintenant dans le cas des suspensions granulaires vibrées en représentant l'évolution de la viscosité au plateau en fonction de la viscosité du fluide interstitiel pour différentes valeurs de tailles de bille, de viscosité de fluide et de contrainte de vibration. Excepté quelques points sur lesquels nous reviendrons par la suite, la viscosité est inversement proportionnelle à η_f. Ces mêmes points sont ensuite représentés en fonction de σ_{lub} (Fig. 2.14(b)). Pour $\sigma_{lub} > 1$ Pa, tous les points expérimentaux forment une seule courbe maitresse avec une pente de -1, qui s'étend sur plus de deux décades en η_0 et en σ_{lub}. Le comportement rhéologique de η_0 est donc dicté par des interactions lubrifiées sous vibrations. Le rôle de cette force est de repousser les billes, ce qui leur donne plus de degrés de liberté. σ_{lub} provoque alors la décohésion du système en détruisant le réseau de particules en contact, ce qui se traduit par une chute de la viscosité η_0.

La question est : que se passe-t-il pour $\sigma_{lub} < 1$ Pa ? La théorie de la lubrification utilisée pour définir σ_{lub} n'est valable que pour de faibles nombres de Reynolds particulaires Re_p (Eq.(2.8)), lorsque les effets visqueux dominent. Pour vérifier cette hypothèse, sur l'insert de la figure 2.14(b), seuls les points avec $Re_p < 1$ sont représentés. On constate alors que tous les points sans exception forment une seule courbe maitresse. Pour $Re_p > 1$, des effets inertiels apparaissent, modifiant le comportement rhéologique des suspensions granulaires de façon non triviale. Intéressons nous à ces deux régimes plus en détails.

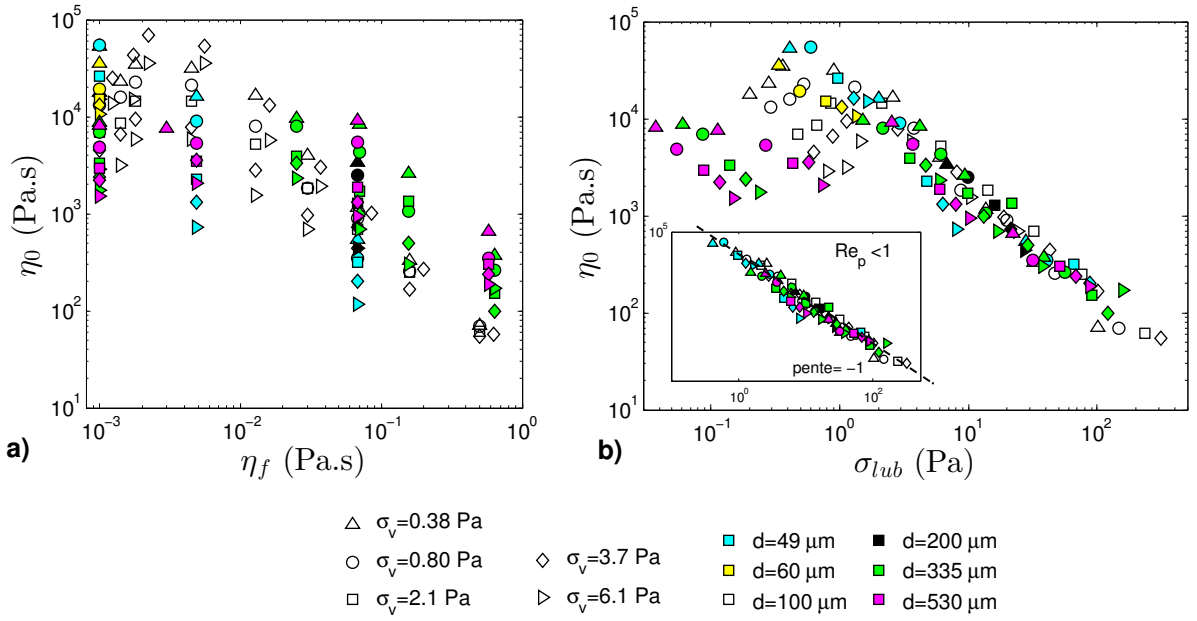


FIGURE 2.14 – a) Viscosité au plateau (η_0) en fonction de la viscosité du fluide (η_f), pour des billes de verre de différentes tailles (d) soumises à différentes contraintes de vibration (σ_v). b) Viscosité au plateau (η_0) en fonction de la contrainte de lubrification ($\sigma_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/d$), pour des billes de verre de différentes tailles (d) soumises à différentes contraintes de vibration (σ_v). En insert, seuls les poins expérimentaux correspondant à un nombre de Reynolds particulaire ($Re_p = \Delta\rho A(2\pi f)d/\eta_f$) inférieur à 1 ont été représentés. La ligne pointillée représente une droite de pente -1.

2.3.4.1 Étude du régime dominé par les forces visqueuses ($Re_p < 1$)

Le tableau 2.2 résume les dépendances de la viscosité de la suspension granulaire modèle en fonction de tous nos paramètres pour des nombres de Reynolds particulaires Re_p inférieurs à 1 (Eq.(2.8)). On remarquera que les vibrations ont le même effet que l'écoulement de cisaillement, elles font chuter la viscosité de la suspension en détruisant le réseau de particules en contact. Dans le régime dominé par les vibrations ($\sigma < \sigma_f$), la décohésion du milieu est due à une répulsion des billes de verre sous l'effet des forces de lubrification. Dans le régime dominé par l'écoulement de cisaillement ($\sigma > \sigma_f$), les billes se réorganisent de telle sorte qu'elles facilitent l'écoulement. Il est donc possible de définir un paramètre commun à ces deux régimes. La présence d'un mouvement brownien macroscopique d'origine mécanique dans les granulaires vibrés nous fait naturellement regarder dans la littérature des suspensions browniennes classiques. Pour ce type de milieu, Quemada [99] a montré que, à fraction volumique constante, la viscosité relative ne dépendait que d'une seule variable, le nombre de Péclet $Pe_{\dot{\gamma}} = \frac{3\pi\eta_f d^3}{2k_b T}\dot{\gamma}$. La courbe maitresse obtenue (η_r en fonction de $Pe_{\dot{\gamma}}$) est ainsi valable pour toutes les suspensions de sphères rigides. Peux-t-on appliquer ce nombre à nos suspensions granulaires vibrées ?

TABLE 2.2 – Dépendances de la viscosité de la suspension dans le régime dominé par les vibrations ($\eta = \eta_0$) et dans le régime dominé par l'écoulement de cisaillement ($\eta = \eta_{300}$) vis-à-vis de la contrainte de vibration (σ_v), de la contrainte (σ) ou du taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$), de la viscosité du fluide (η_f) et de la taille des bille (d), pour $Re_p < 1$.

	σ_v (Pa)	σ ou $\dot{\gamma}$	η_f (Pa.s)	d
Régime dominé par les vibrations ($\sigma < \sigma_f$)	$\eta_0 \propto (\sqrt{\sigma_v})^{-1} \propto (A(2\pi f))^{-1}$	/	$\eta_0 \propto 1/\eta_f$	$\eta_0 \propto d$
Régime dominé par l'écoulement de cisaillement ($\sigma > \sigma_f$)	/	rhéofluidiant + plateau newtonien	$\eta_{300} \propto \eta_f$	/

Le nombre de Péclet : lien entre régimes à bas et haut cisaillement pour $Re_p < 1$

Le nombre de Péclet est défini comme le rapport du temps microscopique de diffusion brownienne intrinsèque au système (t_{br}) sur le temps caractéristique de déformation macroscopique qui dépend des conditions expérimentales (t_{exp}). Les suspensions granulaires étant insensibles au mouvement brownien d'origine thermique, le temps de diffusion brownienne n'est pas le temps le plus pertinent. Au Chapitre 1, le temps microscopique le plus pertinent pour des billes immergées dans un fluide est le temps de chute microscopique défini comme le temps que met une bille pour tomber dans le creux qu'il y a entre deux billes consécutives sous l'effet de la pression granulaire P_g (Fig. 1.17). Il est défini par $t_{micro} = \eta_f/P_g$ [57]. La définition de ce temps reste identique que le milieu soit vibré ou cisaillé. Par contre, le temps à l'échelle macroscopique est différent selon le phénomène considéré, i.e. les vibrations ou l'écoulement de cisaillement. Il est défini comme le temps que met une bille pour se déplacer de son propre diamètre.

Dans le régime contrôlé par l'écoulement de cisaillement ($\sigma > \sigma_f$), ce temps macroscopique est proportionnel à l'inverse du taux de cisaillement soit $t_{exp} \propto 1/\dot{\gamma}$. Le nombre de Péclet s'écrit alors $Pe_{shear} = \frac{t_{micro}}{t_{exp}} = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{P_g}$. Ce nombre est strictement identique au nombre visqueux I_v défini au Chapitre 1 (Eq.(1.12)). En considérant la contrainte frictionnelle au lieu de la pression granulaire, Pe_{shear} est également identique au nombre de Leighton Le_c (Eq.(1.11)) introduit par Huang *et al.* [21] pour décrire la transition frictionnelle-visqueuse dans les suspensions granulaires non vibrées.

Dans le régime contrôlé par les vibrations ($\sigma < \sigma_f$), le temps macroscopique est défini comme le temps que met une bille pour parcourir son diamètre d sous l'effet d'une vitesse $A(2\pi f)$, soit $t_{exp} = d/A(2\pi f)$. Le nombre de Péclet formé, appelé nombre de Péclet de lubrification, est alors défini

par :

$$Pe_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\mu P_g d} \tag{2.12}$$

Nous avons défini Pe_{lub} comme le rapport de deux temps. On peut également le définir comme le rapport de deux contraintes, la contrainte de lubrification sur la contrainte frictionnelle. La contrainte de lubrification contribue à la décohésion du système en repoussant les particules alors que la contrainte frictionnelle contribue à la cohésion du système en rapprochant les particules sous l'effet de la pression granulaire. En termes de rapport d'énergies, Pe_{lub} compare l'énergie mécanique de vibration transmise à travers les forces visqueuses ($E_m = \sigma_{lub} d^3 = \eta_f A(2\pi f) d^2$) par rapport à l'énergie de cohésion interne du système ($E_{cohesion} = \sigma_f d^3 = \mu P_g d^3$).

Parmi les résultats expérimentaux présentés jusqu'à maintenant, la profondeur à laquelle est faite la mesure rhéologique reste constante donc la pression granulaire et par conséquent la contrainte frictionnelle sont constantes. En prenant $\sigma_f = 103$ Pa (valeur déduite par application de la loi de Coulomb), la figure 2.15 représente la viscosité au plateau η_0 en fonction de Pe_{lub}, pour des nombres de Reynolds particulaires inférieures à 1. Tous les points expérimentaux de la figure 2.14(a) se rejoignent sur une même courbe maitresse avec une pente -1. L'allure de cette courbe est semblable à celle obtenue par Quemada [99] pour différentes suspensions de sphères dures browniennes. η_0 diminue quand Pe_{lub} augmente, à l'instar de la viscosité de suspensions de sphères dures browniennes vis-à-vis de $Pe_{\dot{\gamma}}$. En choisissant les temps microscopiques et macroscopiques en adéquation avec le système et le régime d'écoulement considérés, le nombre de Péclet est le nombre sans dimension qui gouverne le comportement rhéologique des suspensions de sphères dures vibrées (Pe_{lub}) ou non (Pe_{shear}).

Si on reprend l'expression de Pe_{lub}, nous avons testé la dépendance de la viscosité vis-à-vis de la viscosité du fluide, de la taille des billes et des paramètres de vibration. Par contre, les mesures étant toujours réalisées pour une même profondeur, nous n'avons pas testé l'effet de la pression granulaire. Dans les granulaires secs, l'effet de la pression sur la viscosité du matériau a été déterminée en rajoutant un piston sur la cellule de mesure [25]. Dans le cas de billes immergées dans un fluide, ce même dispositif n'a pas donné de résultats concluants du fait que le fluide remonte à la surface sous vibrations. Nous testerons l'effet de la pression granulaire par diffusion de lumière (Chapitre 3).

Phénomène de dilatance

La figure 2.15 montre que le comportement de la suspension granulaire dans le régime dominé par

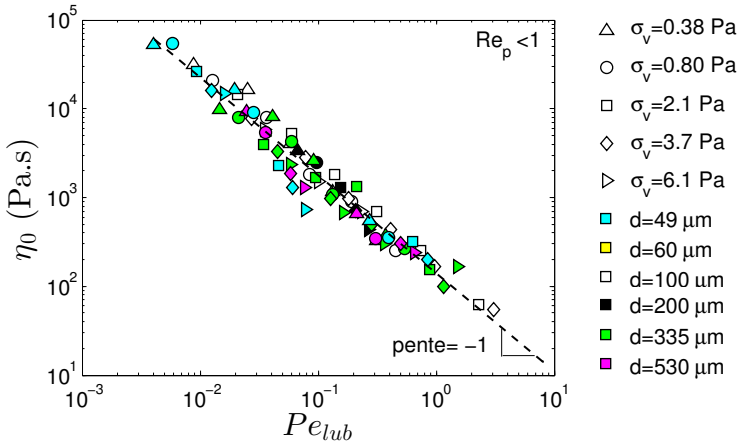


FIGURE 2.15 – Viscosité au plateau (η_0) en fonction du nombre de Péclet de lubrification ($Pe_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/\mu P_g d$), pour des billes de verre de différentes tailles (d) immergées dans des fluides de différentes viscosités (η_f), soumises à différentes contraintes de vibration (σ_v). Seuls les points expérimentaux correspondant à un nombre de Reynolds particulaire ($Re_p = \Delta\rho A(2\pi f)d/\eta_f$) inférieur à 1 ont été représentés.

les vibrations est contrôlé par le nombre de Péclet de lubrification. Ce nombre prend en compte les effets d'interaction de lubrification et de pression granulaire. Cependant, il existe un autre effet connu dans les suspensions granulaires, la dilatance (section 1.2.3.2). Le principe de dilatance de Reynolds (1885) stipule qu'un milieu granulaire compacté ne peut se déformer qu'en augmentant son volume. Pour se mouvoir, les grains doivent s'écarter les uns des autres pour sortir des cages formées par leur voisins ce qui se traduit par une augmentation du volume de l'empilement. On peut donc s'attendre à ce type de comportement lors de la mise en mouvement sous cisaillement ou sous vibrations dans nos expériences. Ce phénomène se traduit par un changement de la fraction volumique effective qui a tendance à diminuer. La viscosité de la suspension dépend alors du nombre de Péclet et de la fraction volumique effective, soit $\eta = \eta(\phi, Pe)$.

Pour une suspension granulaire uniquement soumise à un écoulement de cisaillement, nous avons vu au Chapitre 1 qu'il existait un modèle de viscosité proposé par Boyer *et al.* [27] (section 1.3.1). Ce modèle prend en compte l'effet de la dilatance sur la viscosité de la suspension granulaire modèle. Nous proposons de tester la relation (1.16) sur notre suspension granulaire modèle en l'absence de vibration. En Fig.2.16, le modèle s'ajuste aux données expérimentales avec les paramètres suivants : $\mu_1 = \mu_2 = 0.86$, $I_0 = 0.0001$, $P = 100$ Pa, $\eta_f = 0.7$ Pa.s. Pour avoir un ajustement correct, la viscosité du fluide est prise dix fois supérieure à sa valeur réelle de 70 mPa.s. Le coefficient de frottement μ_1 est beaucoup plus élevé que ce qu'il devrait être (= 0.32 [27]). Ce modèle permet donc de décrire le comportement

de notre suspension granulaire mais les valeurs qui en sont extraites ne sont pas cohérentes dans le cas présent. Cette mise en défaut peut provenir que les suspensions modèles que nous utilisons sont gravitationnelles alors que les paramètres du modèle établi par Boyer *et al.* [27] ont été déterminés sur des suspensions isodenses. Nous allons voir dans la prochaine section une autre approche pour modéliser ce type de comportement.

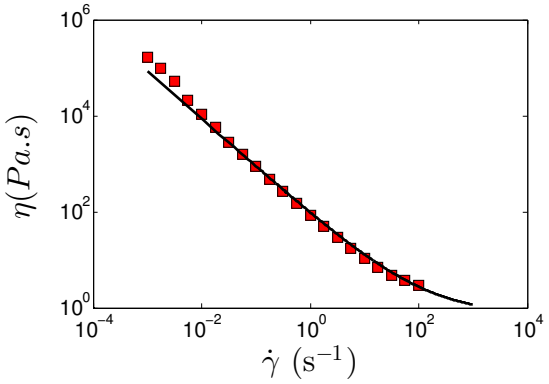


FIGURE 2.16 – Viscosité en régime permanent (η) en fonction du taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$), pour des billes de verre de 335 μm de diamètre immergées dans un mélange Emkarox-eau de viscosité η_f = 70 mPa.s, en l'absence de vibration. La ligne en continue matérialise l'ajustement des données par l'Eq.(1.16).

Pour une suspension granulaire uniquement soumise cette fois ci à des vibrations, l'effet de dilatance est quasiment inexistant à l'échelle macroscopique. En effet, en utilisant le même dispositif que celui utilisé pour sonder la compaction d'une suspension granulaire vibrée (Annexe B), la surface libre de l'empilement ne semble pas augmenter sous vibrations au cours du temps, ce qui implique que la fraction volumique ne diminue pas au cours du temps. A faible cisaillement, dans le régime dominé par les vibrations, les effets de dilatance sont à priori négligeables à l'échelle macroscopique. Néanmoins, à l'instar des travaux de Boyer *et al.* [27], on peut se dire que la fraction volumique est fonction du nombre de Péclet de lubrification Pe_{lub}. Ceci implique $\eta_0 = \eta_0(\phi(Pe_{lub}), Pe_{lub})$, soit $\eta_0 = \eta_0(Pe_{lub})$. La relation $\eta_0 \propto 1/Pe_{lub}$ prend donc en compte les éventuels effets de dilatance.

2.3.4.2 Étude du régime dominé par les forces inertielles ($Re_p > 1$)

Sur la figure 2.14(b), la contrainte de lubrification à elle seule ne semble pas contrôler le comportement de la suspension granulaire pour les points expérimentaux ayant un nombre de Reynolds particulaire supérieur à 1. En effet, les forces inertielles jouent un rôle non négligeable dans le comportement de la suspension. La viscosité est donc contrôlé par une compétition entre les forces inertielles

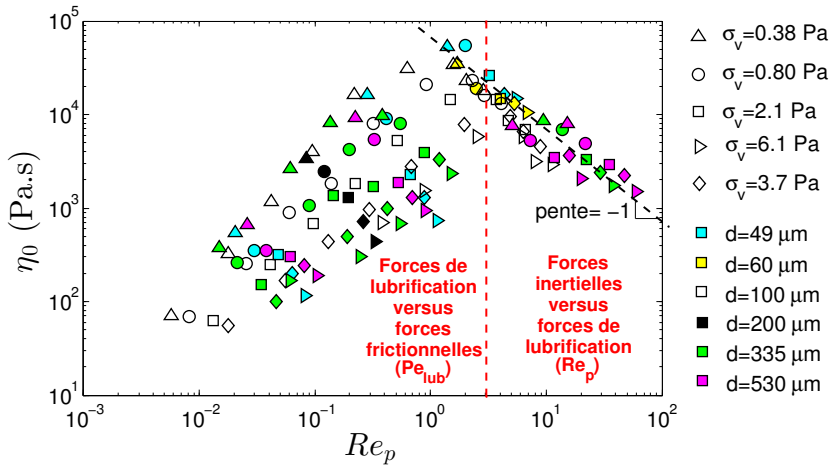


FIGURE 2.17 – Viscosité au plateau (η_0) en fonction du nombre de Reynolds particulaire ($Re_p = \Delta\rho A(2\pi f)d/\eta_f$), pour des billes de verre de différentes tailles (d) immergées dans des fluides de différentes viscosités (η_f), soumises à différentes contraintes de vibration (σ_v). Pour $Re_p \gtrsim 1$, la viscosité de la suspension est contrôlée par la compétition entre forces inertielles et forces visqueuses, autrement dit Re_p. Pour $Re_p \lesssim 1$, la viscosité de la suspension est contrôlé par la compétition entre forces de lubrification et forces frictionnelles, autrement dit Pe_{lub}.

et les forces visqueuses dont le rapport n'est autre que le nombre de Reynolds particulaire Re_p. Lorsque ces mêmes points sont représentés en fonction non plus de σ_{lub} mais de Re_p, ils se rejoignent globalement tous sur une même courbe maitresse avec une pente -1, soit $\eta_0 \propto Re_p^{-1} \propto \frac{\eta_f}{\Delta\rho A(2\pi f)d}$. Par contre, dans le régime contrôlé par les forces visqueuses ($Re_p < 1$), le comportement rhéologique du système est gouverné par une compétition entre les forces de lubrification et les forces frictionnelles liées à la pression granulaire.

Dans la suite du manuscrit, nous étudierons le régime dominé par les effets visqueux, i.e. ayant des nombres de Reynolds particulaires Re_p (Eq.(2.8)) inférieurs à 1.

2.3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons pu effectuer une première caractérisation rhéologique en écoulement des suspensions granulaires vibrées, l'effet des vibrations sur la viscosité de la suspension étant capturé à bas cisaillement. Les vibrations font en effet apparaitre un plateau newtonien de viscosité η_0 pour des contraintes de cisaillement inférieures à la contrainte frictionnelle. Nous verrons qu'il est possible de décrire et de prédire ce type de comportement dans la prochaine section. Pour des nombres de Reynolds particulaires inférieurs à 1, nous avons montré que l'effet de la viscosité du fluide interstitiel n'était pas trivial puisque la viscosité diminue quand celle du fluide augmente. Ce comportement

atypique s'explique par la présence de contraintes de lubrification dont le rôle est de détruire le réseau de particules en contact, en opposition à la pression granulaire qui contribue à la cohésion du système. La viscosité de la suspension dépend alors du rapport de ces deux contraintes, qui forme le nombre de Péclet de lubrification Pe_{lub}, de telle sorte que $\eta_0 \propto 1/Pe_{lub}$. Néanmoins des questions restent en suspens. Premièrement, on peut se demander si ce comportement est inhérent aux vibrations ou s'il est dû à des hétérogénéités sous cisaillement. Nous verrons au Chapitre 3 grâce à des expériences de diffusion de lumière effectuées sans aucun cisaillement que ce sont bien les vibrations qui induisent ce comportement. Second point, il reste à comprendre pourquoi η_0 est inversement proportionnel à Pe_{lub}. Nous avons tenté d'appliquer la rhéologie $\mu(I_v)$ à nos systèmes. Dans le modèle proposé par Boyer *et al.* [27] (Eq.(1.16)), nous avons ainsi remplacé le nombre visqueux I_v par le nombre de Péclet de lubrification Pe_{lub}. Ce modèle modifié ne permet pas de décrire l'évolution de η_0 en fonction de Pe_{lub}. En effet, ce modèle est basé sur la dilatance du système, or ce phénomène n'est pas observé sous vibrations, tout du moins à l'échelle macroscopique, pour la gamme d'énergie de vibration appliquée

ici.

Résumé : Soumis à des vibrations, le comportement rhéologique d'une suspension granulaire modèle présente deux régimes :

- un régime dominé par les vibrations pour $\sigma < \sigma_{\mathbf{f}}$. Les vibrations suppriment la contrainte seuil du matériau et font apparaitre un plateau newtonien de viscosité η_0.
- un régime dominé par l'écoulement de cisaillement pour $\sigma > \sigma_{\mathbf{f}}$. La suspension granulaire se comporte comme une suspension homogène de sphères dures.

Avec σ_f la contrainte frictionnelle coulombienne proportionnelle à la pression granulaire P_g (Loi de Coulomb).

Le comportement de la viscosité η_0 est contrôlé par deux nombres sans dimensions qui dépendent de la valeur du nombre de Reynolds particulaire ($Re_p = \Delta\rho A(2\pi f)d/\eta_f$) :

- **Cas $\mathbf{Re_p < 1}$** : le nombre de Péclet de lubrification Pe_{lub}, rapport entre contrainte de lubrification ($\sigma_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/d$) et contrainte frictionnelle (σ_f), tel que $\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1}$.
- **Cas $\mathbf{Re_p > 1}$** : le nombre de Reynolds particulaire Re_p, rapport entre forces d'inertie et forces visqueuses, tel que $\eta_0 \propto Re_p^{-1}$.

2.4 Modélisation du comportement rhéologique en régime permanent et transitoire

Cette partie est présentée sous la forme d'un article scientifique tel qu'il a été soumis à *Journal of Rheology* (2014). Dans la partie précédente, nous nous sommes intéressés au comportement rhéologique en régime permanent d'une suspension granulaire modèle soumise à des vibrations. Une transition de régime apparait pour une contrainte de cisaillement (σ) égale à la contrainte frictionnelle (σ_f), entre un régime dominé par les vibrations pour $\sigma < \sigma_f$ et un régime dominé par l'écoulement de cisaillement pour $\sigma > \sigma_f$. Est-il possible de prédire ce type de comportement ?

Nous avons vu dans la section précédente que la rhéologie $\mu(I_v)$ était capable de décrire le comportement de notre suspension granulaire modèle en l'absence de vibrations. Néanmoins les valeurs des paramètres qui en sont extraites ne semblent pas cohérentes. De plus, on désire prédire la présence du plateau newtonien qui apparait sous vibrations, ce que la rhéologie $\mu(I_v)$ ne fait pas.

On propose dans cette partie une autre approche que la rhéologie $\mu(I_v)$ pour pouvoir prédire et décrire le comportement de nos suspensions granulaires vibrées. Le modèle est basé sur une approche phénoménologique inhérente au comportement bimodal des chaines de forces dans une suspension granulaire. En effet, nous avons évoqué au Chapitre 1 l'existence d'un véritable réseau de particules en contacts avec un « réseau de contacts fort » capable de transmettre les contraintes supérieures à la contrainte moyenne et un « réseau de contacts faible » transmettant des contraintes inférieures à cette contrainte moyenne. Le modèle, qui se présente sous la forme d'une équation différentielle constitutive, ne s'arrête pas au régime permanent. Il est capable de prédire le comportement du système en conditions instationnaires, dans le régime linéaire et non linéaire, avec et sans vibrations. Il est également en mesure de pouvoir prédire le comportement de milieux granulaires secs. Le modèle établi dans le cas sec et testé sur des données expérimentales est présenté en Annexe C.

2.4.1 Abstract

We propose, in this paper, a model for predicting the rheological response of both vibrated and sheared 3D granular suspensions in stationary and nonstationary conditions. The major assumption of this model is the inherent bimodal behavior of chain forces in granular packings. The model is set up from a kinetic equation describing the dynamic exchange between a population of strongly correlated caged particles and a population of slightly correlated free particles. To compare the predictions of

the model to experimental results, the kinetic equation is transformed into a differential constitutive equation, relating stress to strain, by including the effect of the interstitial fluid on the suspension. With only four adjustable parameters intrinsic to the system (i.e. independent of the type of rheological test used), the model is in very close agreement with experiments. Despite the fact that our approach remains at a mean-field level, it is able to predict and describe several rheological behaviors, in stationary, nonstationary conditions, linear and nonlinear regimes, including Newtonian and frictional Coulombian regimes, as well as elastic Hookean and viscoelastic Maxwellian behaviors. It then appears that this two state approach allows capturing both the viscoelastic behavior of dry granular materials and granular suspensions. Vibrated dense suspensions and granular media are thus unified under a common framework.

2.4.2 Introduction

The mechanical properties of suspensions of non-Brownian particles with dimensions above a few microns control numerous natural phenomena, such as landslides or debris flows [100, 101] and are of prime importance in a wide range of industrial applications (food manufacturing, mining engineering, construction industry for example). These materials exhibit complex rheological properties (shear localization, size segregation, particle migration) [28, 52, 41, 46, 36] that cannot be understood within the scope of standard solid or fluid mechanics. In this paper, we focus our attention on the rheology of vibrated gravitational suspensions, i.e. suspensions where particles are denser than the suspending fluid, relevant for understanding most of the above mentioned applications. Although such suspensions have received much attention over the past few years [20, 22, 27, 57, 102, 103] no universal law currently exists to describe their flow behavior in complex geometries. This is mainly linked to the fact that such systems, being athermal in nature can, at rest, be jammed far from equilibrium, which makes tricky the preparation of a sample in a repeatable initial state. One possible way of overcoming this difficulty is to vibrate the system. The use of such mechanical energy was shown to be analogous to the use of thermal energy for Brownian systems [77, 78, 79, 80, 81]. Besides pure interests, understanding the effects of external vibrations on the rheology of granular suspensions is relevant for the optimization of their transport, storage or mixing properties in industrial processes or for a better understanding of natural phenomena such as soils liquefaction [12] or landslides. In that context, we recently analyzed the rheological behavior of concentrated gravitational suspensions subjected to vibrations, in steady

12. Saturated soils are for example commonly encountered in nature. Vibrations induced by Earthquakes can cause the liquefaction of saturated soils.

state flow [90], for particular Reynolds number Re_p smaller than 1. For dense granular suspensions of spherical particles (with diameter d) immersed in a Newtonian fluid of viscosity η_f and subjected to sinusoidal vibrations (amplitude A and frequency f), $Re_p = \Delta\rho A(2\pi f)d/\eta_f$ where $\Delta\rho$ is the density difference between the beads and fluid. Depending on the value of the applied shear stress, two distinct flow regimes were thus evidenced. At high shear stress, the suspension viscosity is independent of the frequency and amplitude of the vibrations and bead size. Viscous effects being dominant, the granular suspension behaves as a homogeneous suspension of hard spheres and the evolution of its viscosity with volume fraction can be well described by Quemada′s law given by $\eta = \eta_f(1-\phi/\phi^*)^{-2}$, where η is the suspension viscosity, η_f the viscosity of the interstitial fluid, ϕ the volume fraction and ϕ^* the maximum volume fraction [71]. In contrast, at low shear stress, vibrations strongly affect suspension viscosity with the appearance of a viscous Newtonian plateau η_0 whose value depends on vibration energy, bead size and suspending fluid viscosity. All these effects can be captured by defining one dimensionless number, the lubrication Peclet number defined by $Pe_{lub} = \sigma_{lub}/\sigma_f = \eta_f A(2\pi f)/\mu P_g d$, where A and f are the vibration amplitude and frequency, respectively, η_f the suspending fluid viscosity, d the bead diameter, μ the effective friction coefficient of the medium and P_g the granular pressure [90]. Pe_{lub} can be seen as the ratio between the lubrication stress $\sigma_{lub} \propto \eta_f A(2\pi f)/d$ that controls the repulsion between grains and facilitates their displacements and the frictional stress $\sigma_f = \mu P_g$ that ensures the internal stability of the packing. Using such a definition, a single master curve linking suspension viscosity η_0 with Pe_{lub} can be obtained, η_0 scaling as the inverse of Pe_{lub}. By combining Multi-Speckle Diffusing Wave Spectroscopy (MSDWS) and mechanical spectroscopy measurements, we were able to further show that such dependence has a dynamical origin, as the longest relaxation time τ_r derived from either experiment appears to scale as the inverse of Pe_{lub} [104]. This implies that the dependence of η_0 with Pe_{lub} can be assigned to the dynamics of rearrangements mechanisms under vibrations and in that context, the relaxation time τ_r can be interpreted as the inverse of f_b, the average frequency of contact breaking events in the suspension. Any modeling approach that could be able to predict the rheological response of a 3D granular suspension subjected or not to vibrations, under low and high shear must then clearly take into account grain dynamics in the suspension. Considering in addition that numerous experimental [105, 106, 107, 108, 109, 110] and numerical studies [13, 111, 112] have shown that the contact network in a granular material can be divided into two sub-networks, the « strong contact network » carrying stresses greater than the average stress and the « weak contact network » carrying stresses lower than the average force, we aim in the present paper at proposing

a phenomenological model by developing a kinetic equation describing the dynamics of this contact network. Such an approach appears relevant for the suspensions we study, as various works [113, 114] show that the distinction between two sub-networks in a « strong » and a « weak » state makes sense in the case of concentrated granular suspensions. Furthermore, a phenomenological dual-state approach has already proven efficient for describing the rheological behavior of stationary dense granular flows along an inclined plane close to the jamming transition [115, 116, 117].

Following the same way, we wish to show in the present paper that a differential constitutive equation that can be derived from the two state model is not only able to predict the rheological responses of vibrated dry granular materials [118] but also the behavior of vibrated granular suspensions. Moreover, the model also predicts the macroscopic frictional to viscous transition observed experimentally in vibrated or not dense suspensions [20, 21, 28, 32, 114]. Although the model is based on basic mechanisms to describe the kinetics of rearrangements induced by the shear and vibrations, it is worth noting that our approach remains at a mean-field level.

In the first Sec. II, we develop the phenomenological two-state model. Section III presents the materials and methods. In Sec. IV, we compare the predictions of the model with experimental data for an illustrative sample. In Sec.V, we study the evolution of the model parameters as a function of the bead size, the fluid viscosity and the vibration energy. Section VI deals with a final discussion.

2.4.3 Model

Our approach to describe the rheological behavior of vibrated granular suspensions is based on a phenomenological two state model inspired from the bimodal character of chain forces (« strong »and « weak »contact networks) [110, 111, 119, 120, 105]. From this idealized point of view, two distinct states of grains can be distinguished in a vibrated granular material under shear : (i) a consolidated state (C) where the grains are in contact and able to ensure stress transmission, corresponding to the « strong contact network », and (ii) a mobile state (M) where the grains are disconnected and unable to provide a such transmission, corresponding to the « weak contact network ». A grain can evolve from one state to another under the effect of vibrations and/or shear flow. If we define the fraction of grains in state (C) as $P_C = N_C/N_p$ with N_C the number of grains in state (C) and N_p the total number of grains, P_C can be thought of as the probability that a grain is in state (C). Defining P_M as the occupation probability of state (M) and considering that $P_M + P_C = 1$, the temporal evolution of P_C is given by :

$$\dot{P}_C(t) \quad = \omega_{CM}(t)P_M(t) - \omega_{MC}(t)P_C(t) = \omega_{CM}(t)(1 - P_C(t)) - \omega_{MC}(t))P_C(t) \tag{2.13}$$

Where the kinetic constants $\omega_{CM}(t)$ and $\omega_{MC}(t)$ represent the frequencies of transition from state (M) to state (C) and from state (C) to state (M), respectively. We assume that the transition $C \rightarrow M$ related to the breaking of the contacts network results from the application of shear flow and vibrations. It is reasonable to separate the effects of vibrations and of the flow in the kinetic equation since the vibrations are vertical and the imposed stress or strain is horizontal. These two reorganization processes being independent, the transition frequency $\omega_{MC}(t)$ is then equal to the sum of the frequencies of reorganization of each process. The probability of reorganization induced by vibrations is equal to the Brownian reorganization frequency of the grains f_b whereas that related to the shear flow is proportional to the shear rate. Consequently, $\omega_{MC} = c_1\dot{\gamma} + f_b$ with c_1 a constant. In contrast, the transition $M \rightarrow C$ is only due to shear flow, therefore $\omega_{CM} = c_2\dot{\gamma}$ with c_2 a constant. With these assumptions, equation (2.13) can then be written as :

$$\dot{P}_C(t) = c_2\dot{\gamma}(t)(1 - P_C(t)) - (c_1\dot{\gamma}(t) + f_b)P_C(t)$$

$$\Leftrightarrow \dot{P}_C(t) + (\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b)P_C(t) = c_2\dot{\gamma}(t) \tag{2.14}$$

Where $\gamma_c = 1/(c_1 + c_2)$ is a critical deformation linked to the rupture of the contact network, related to the limit of the linear viscoelastic domain of the samples.

Checking the validity of kinetic equation (2.14) requires a comparison between the predictions derived from the application of (2.14) and experimental results. This can be achieved by linking P_C to a rheological variable that can be measured experimentally. In the case of dense granular suspensions, two contributions to the total shear stress must be considered, i.e. a frictional and a viscous contribution. In the following, we called $\sigma(t)$ the shear component of the stress tensor. It can be considered as an ensemble average, since it has been shown that the vibrations restore the ergodic character of the system [77, 81].

We make the assumption that the average total stress can be decomposed as follow :

$$\sigma(t) = \sigma_C(t)P_C(t) + \sigma_M(t)P_M(t) + \sigma_{MC}(t)P_C(t)P_M(t) \tag{2.15}$$

$\sigma_C(t)$ is the contact stress between consolidated particles (state (C)-state (C)). $\sigma_M(t)$ is the lubrication contact stress between free flowing particles (state (M)-state (M)). $\sigma_{MC}(t)$ is the lubrication stress between free flowing particles and consolidated particles (state (M)-state (C)). Since the last two stresses are both related to lubrication interaction, we assume that $\sigma_{MC}(t) \approx \sigma_M(t)$. Since $P_M(t) = 1 - P_C(t)$, Eq.(2.15) can be written as :

$$\sigma(t) = \sigma_C(t)P_C(t) + \sigma_M(t)\left[P_M(t) + P_C(t)P_M(t)\right] \tag{2.16}$$

$$= \sigma_C(t)P_C(t) + \sigma_M(t)\left[1 - P_C^2(t)\right] \tag{2.17}$$

In $3D$ granular media, experimental studies of nonlinear acoustic propagation [120, 119] show that the fraction of weak contacts is large and is about $60 - 70$ % of the total amount of contacts. For that reason, we assume in the following a large fraction of free flowing particles in the packing so that $P_C^2(t) << 1$. Then Eq.(2.15) reduces to :

$$\sigma(t) = \sigma_C(t)P_C(t) + \sigma_M(t) \tag{2.18}$$

Eq.(2.18) implies that $P_C(t) = \frac{\sigma(t)-\sigma_M(t)}{\sigma_C(t)}$. Introducing this relation in Eq.(2.14), one obtains :

$$\dot{\sigma}(t) + \left(\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right)\sigma(t) = G\dot{\gamma}(t) + \left(\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right)\sigma_M(t) + \dot{\sigma}_M(t) \tag{2.19}$$

Where $G = \sigma_C c_2 = \text{cte}$ $(\forall\dot{\gamma})$.

Without vibrations[13] ($f_b = 0$) and in steady state regime, Eq.(2.19) reduces to $\sigma(t) = G\gamma_c + \sigma_M(t)$. The rheological behavior of a granular suspension in these conditions has already been studied [6, 22, 113, 114], leading to $\sigma(t) = \sigma_f + \eta\dot{\gamma}(t)$, with σ_f the frictional stress and η the suspension viscosity. The identification of the two relations shows that $G\gamma_c = \sigma_f = \text{cst}$ and $\sigma_M(t) = \eta\dot{\gamma}$. Therefore, $G\gamma_c$

13. Even in the absence of vibration, the granular suspension is prepared under vibrations (see Sec. III : Experimental section). Therefore $\sigma(t)$ can be considered as an ensemble average and Eq.[2.19] can be derived.

equals the frictional stress as in dry granular media [25, 118] or in saturated granular suspensions [104].

In the relation $\sigma_M(t) = \eta\dot{\gamma}$, η depends on η_f, the viscosity of the interstitial fluid, and on ϕ_M, the volume fraction in free flowing particles. Due to the dilatancy, ϕ_M can change with the shear rate $\dot{\gamma}$, so $\eta = \eta(\phi_M(\dot{\gamma}), \eta_f)$. We assume in the following that the volume fraction ϕ_M does not depend strongly on $\dot{\gamma}$ in the range of shear rate and vibration energy used. This hypothesis will be justified a posteriori by the agreement between the model and experimental results. Considering $\eta(\phi_M(\dot{\gamma}), \eta_f) = \eta_H$ as a constant is, as a first approximation, a reasonable assumption, avoiding excessive complexity of the model. The relevance of such an assumption will be assessed in the following by comparison with experimental results. Therefore, η_H is a unique function of the fluid viscosity η_f. It comes : $\sigma_M(t) = \eta_H\dot{\gamma}(t)$ and $\dot{\sigma}_M(t) = \eta_H\ddot{\gamma}(t)$ where η_H is the viscous contribution to the stress transmission, due to free flowing particles (state M) in suspension in the fluid of viscosity η_f. Eq.(2.19) can be written as :

$$\dot{\sigma}(t) + \left(\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right)\sigma(t) = (G + \eta_H f_b)\dot{\gamma}(t) + \eta_H\frac{\dot{\gamma}^2(t)}{\gamma_c} + \eta_H\ddot{\gamma}(t) \tag{2.20}$$

If the fluid viscosity tends to zero, such as would be the case in air, η_H tends also to zero and Eq.(2.20) reduces to :

$$\dot{\sigma}(t) + \left(\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right)\sigma(t) = G\dot{\gamma}(t) \tag{2.21}$$

This latter equation was obtained by [118] that deals with the rheological behavior of dry granular media. It then appears that, if correct, Eq.(2.20) should be able to capture the rheological behavior of granular suspensions, independently of the nature of the suspending fluid. In the following, we will then compare the predictions of Eq.(2.20) to the rheological response of granular suspensions for various mechanical stresses, in both stationary and non-stationary conditions. Still, it must be pointed out the approach based on a kinetic equation is valid only if the characteristic time for the macroscopic evolution of the system (probed by rheological experiments) is larger than that of the microscopic transitions between different states. For Reynolds number higher than 1, i.e. for systems controlled by inertial effects, the relevant microscopic time is the confinement time $t_{cf} = d_p\sqrt{\rho_p/P_g}$ with d_p the particle diameter, ρ_p the particle density and P_g the confining pressure [1, 24, 57]. For Reynolds

number lower than 1, i.e. for systems controlled by viscous effects, the relevant microscopic time is defined by $t_{fall} = \eta_f/P_g$, with η_f the fluid viscosity. t_{cf} and t_{fall} can be defined as the time for a particle moving through a fluid of viscosity η_f to come into direct contact with another particle under the pressure P_g [6, 57] with $P_g = \Delta\rho\phi gz$, where $\Delta\rho = (\rho_p - \rho_f)$ is the density difference between the particles and the fluid, ϕ the volume fraction, g the gravitational constant and z the average depth at which the measure is carried out. Considering glass beads of diameter $d_p \approx 100$ μm immersed in a Newtonian fluid at a volume fraction $\phi \approx 0.61$, considering $\rho_p \approx 2500$ kg.m^{-3}, $\rho_f \approx 1000$ kg.m^{-3}, $\eta_f \approx 1$ Pa.s, $z \approx 10^{-2}$ m, $P_g \approx 150$ Pa, one obtains $t_{cf} \approx 4 \times 10^{-4}$ s, $t_{fall} \approx 7 \times 10^{-3}$ s. Both times are significantly lower than the times probed by rheological experiments (10^{-2}-10^{2} s) ensuring a proper separation of time scales.

2.4.4 Experimental section

2.4.4.1 Material and methods

We study the rheological response of dense gravitational suspensions composed of non-colloidal monodisperse particles (Fig.2.18(a)) immersed in a Newtonian fluid (Fig.2.18(b)). The system is formed with spherical glass beads ($\rho_p \approx 2500$ kg.m^{-3}, Whitehouse Scientific) that are immersed in Emkarox-water mixtures ($\rho_f \approx 1030$ kg.m^{-3}). The beads are immersed with a volume fraction[5] $\phi = 0.61$ [14], which is obtained by weighting the glass beads and the interstitial fluid. All experiments were carried out using a stress-imposed rheometer (AR 2000, TA Instruments) coupled with a "powder cell" (Fig.2.18(c). This cell is composed of a four blades vane device (10 mm radius ; 30 mm length) installed into a cylindrical baffled cup (25 mm radius ; 5 mm baffle width) and is analogous to a virtual Couette cell with an annular gap of 10 mm [25]. The device is connected to a vibration shaker (Bruel&Kjær) controlled by a power amplifier, a function generator and an accelerometer. In the present case, the sample is subjected to vertical sinusoidal vibrations and horizontal shear stress. By analogy to a shear stress, it is possible to define a mechanical vibration stress σ_v expressed as the mechanical energy supplied to the system per unit volume of a harmonic oscillator of the same mass as the sample, hence $\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$, with ρ_s the density of the system, A and f the amplitude and frequency of vibrations, respectively. Rheological parameters (σ, γ, $\dot{\gamma}$) are obtained from the evolution of torque vs angular rate via a calibration procedure detailed in the works of [25, 118]. Before any data collection, the sample is first

14. The volume fraction ϕ determined by weighing is our control parameter. The effective volume fraction related to the rheological behavior of the sample is very close to ϕ. However it is modulated this value since it depends on mechanical solicitations under consideration (shear and vibration).

vibrated at $f = 30$ Hz and $A = 1075$ μm during 10 minutes to ensure a "stationary state" defined as the state from which the volume fraction does not change anymore.

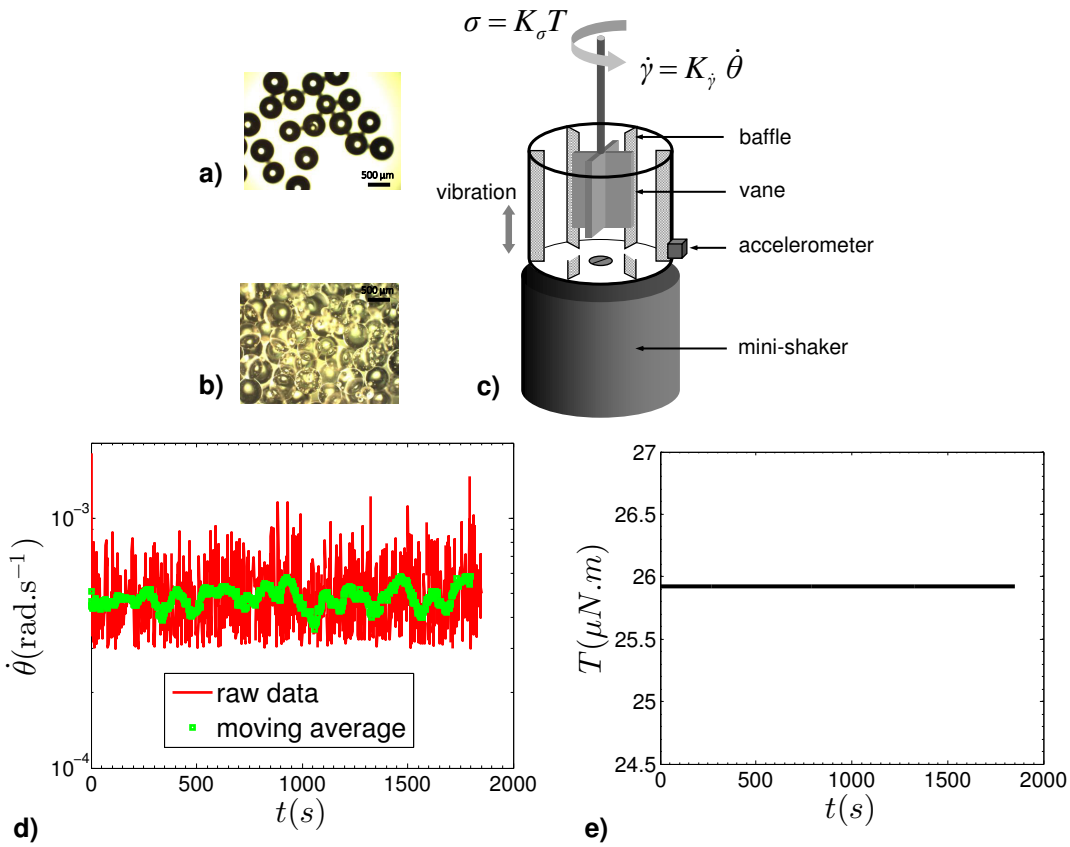
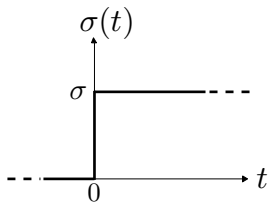
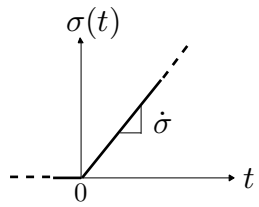
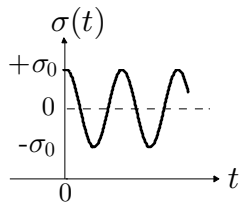


FIGURE 2.18 – (a) Microscopic snapshot of glass beads ($D = 530$ μm). (b) Microscopic snapshot of glass beads ($D = 530$ μm) immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture. (c) Experimental setup [25, 118]. (d) Angular velocity signal (raw data and moving average over 60 s) for a granular suspension made up of 335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture, vibrated at $f = 50$ Hz, $A = 287$ μm. (e) Row torque signal for the same granular suspension.

Typical and row torque/angular velocity signals are shown in Fig.2.18d and 2.18e for a vibrated granular suspension ($f = 50$ Hz, $A = 287$ μm). In that example, the imposed shear stress equals 1 Pa. Thanks to the closed loop system which controls the rheometer and the calibration procedure presented in [25, 118], externally applied vibrations have no critical effects on the measured angular velocity measurement, contrary to experimental problems reported in [83]. Raw curves show that the steady state is reached after few seconds and that vibrations have no prejudicial effects on measurements. The typical noise level induced by vibrations is about 10 %. In the following, angular velocity measurements are averaged during 60 s after a 10 s delay ensuring the achievement of a steady state flow regime.

TABLE 2.3 – The different mechanical stresses

Stress step	Continuous stress ramp	Sinusoidal stress
		

2.4.4.2 Experimental procedure

Model predictions are compared to experimental data by subjecting the sample, in addition to vibrations, to various mechanical stresses, i.e. a stress step, a continuous stress ramp and a sinusoidal stress (Table 2.3).

In the case of a stress step of magnitude σ, the sample is subjected to a stress $\sigma(t)$ defined by $\sigma(t) = 0$ for $t < 0$ and $\sigma(t) = \sigma$ for $t > 0$ with $\sigma =$ cte. For a continuous stress ramp, the stress is no longer constant for $t > 0$ but is an increasing function of time such as $\sigma(t) = \dot{\sigma}t$ with $\dot{\sigma} =$ cst. In the case of a sinusoidal stress defined by $\sigma(t) = \sigma_o \cos(\omega t)$ and $\dot{\sigma}(t) = -\omega\sigma_o \sin(\omega t)$ with σ_0 the oscillation amplitude and ω the angular frequency, two types of test were carried out. In the first one (stress sweep), σ_o varies from 1 to 1000 Pa, at a fixed frequency $\omega = 1$ rad.s^{-1}, whereas in the second one (frequency sweep or mechanical spectroscopy), the angular frequency ω is varied at a fixed amplitude σ_o, whose value is chosen in the linear viscoelastic domain.

Rheological tests were carried out for various values of vibration stress (σ_v ranging from 1.6 to 39.6 Pa), bead size ($d = 49 \pm 3$ μm, 100 ± 8 μm, 335 ± 15 μm) and fluid viscosity ($\eta_f = 40$, 67.8 and 160 mPa.s), i.e. for different values of lubrication Peclet number Pe_{lub}. In the following, for the sake of clarity, we will first focus on the results obtained for a « illustrative » sample made up of 335 μm glass beads in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture. This will allow assessing the consistency of the model by fitting the equations derived from the integration of Eq.(2.20) to experimental data and comparing the values thus obtained for parameters G_M, γ_c, f_b and η_H (section 2.4.5). We will then analyze the dependence of the model parameters with Pe_{lub} (section 2.4.6).

2.4.5 Comparison of the model with rheological experiments

2.4.5.1 Response to a stress step

Experimentally, the sample is subjected to stress steps (Table 2.3) of magnitude 1, 3, 5 and 10 Pa. In the limit of small stresses, for $\sigma(t) \ll G\gamma_c$ or for $\dot{\gamma}(t)/\gamma_c \ll f_b$, Eq.(2.20) becomes :

$$\dot{\sigma}(t) + f_b\sigma(t) = (G + \eta_H f_b)\dot{\gamma}(t) + \eta_H\ddot{\gamma} \tag{2.22}$$

Equation (2.22) is similar to the Maxwell Jeffreys model [121, 26] written as :

$$\dot{\sigma}(t) + \frac{1}{\lambda_M}\sigma(t) = G_M\dot{\gamma}(t) + G_M\lambda_J\ddot{\gamma} \tag{2.23}$$

With $\lambda_M = \dfrac{1}{f_b}$, $G_M = G + \eta_H f_b$ and $\lambda_J = \dfrac{\eta_H}{G_M}$. Three relevant parameters are used in this model, i.e. a relaxation time λ_M, a retardation time λ_J and a shear modulus G_M (rigidity modulus). For very low values of η_H, i.e. in the dry case, $\lambda_J \approx 0$, and Eq.(2.22) reduces to $\dot{\sigma}(t) + \dfrac{1}{\lambda_M}\sigma(t) = G_M\dot{\gamma}(t)$ with $\lambda_M = 1/f_b$ and $G_M = G$, i.e. the Maxwell equation. This latter equation displays strong similarities with the phenomenological model developed by Nguyen *et al.* [122]. The similarity between Eq.(2.22) and the Maxwell-Jeffreys model implies that all the classical results associated to the use of this model can be applied to vibrated granular suspensions. For instance, in the framework of the Maxwell Jeffreys model [121, 26], the creep function $J(t) = \gamma(t)/\sigma$ can be written as :

$$J(t) = \frac{1}{\eta_0}t + \frac{1}{G_M}\left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\lambda_J}\right)\right] \tag{2.24}$$

Consequently, for a vibrated granular suspension, the strain response to a step stress is given by :

$$\gamma(t) = \frac{\sigma}{\eta_0}t + \frac{\sigma}{G_M}\left(1 - \exp(-\frac{t}{\lambda_J})\right) \tag{2.25}$$

Where $\eta_0 = G_M\lambda_M = \dfrac{G_M}{f_b}$ is the zero shear rate viscosity.

At long times ($t \gg \lambda_J$), or for very low values of λ_J (such as in the dry case), Eq.(2.25) can be simplified as $\gamma(t) = \dfrac{\sigma}{\eta_0}t + \dfrac{\sigma}{G_M}$. This implies that in the limit of small stresses, dry and fluid saturated vibrated granular materials should exhibit a similar behavior at long times but distinct behaviors at

shorter times.

Figure 2.19 shows the temporal evolution of the strain $\gamma(t)$ for various stress steps applied to our "illustrative" sample ($d = 335$ μm, $\eta_f = 67.8$ mPa.s) under vibrations ($f = 50$ Hz and $A = 287$ μm). At long times ($t \gg \lambda_J$), as predicted by Eq.(2.25), the strain evolves linearly with time. Fitting the 4 curves by Eq.(2.25) yields average values of $\eta_0 = 2350$ Pa.s and $G_M = 200$ Pa. In contrast the value of λ_J ($\sim 10^{-2}$ s) is too imprecise to be taken into account.

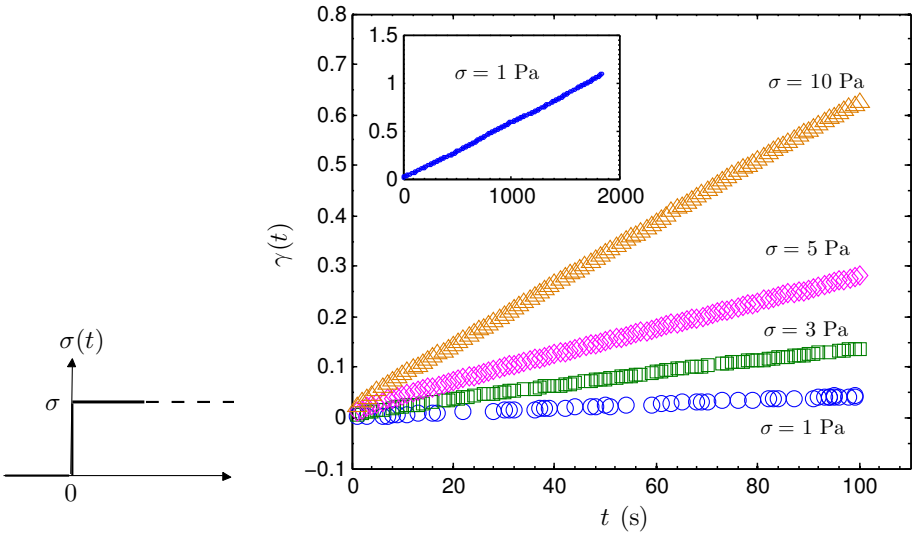


FIGURE 2.19 – (Color online) Temporal evolution of the strain ($\gamma(t)$) for stress steps of 1, 3, 5 and 10 Pa, in the presence of vibrations ($f = 50$ Hz and $A = 287$ μm), for 335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox water mixture. The inset represents the temporal evolution of the strain for a stress step of 1 Pa, up to 1800 s.

Further information can be obtained by imposing successive stress values between 1 and 1000 Pa during 60 s (10 points per decade) and measuring $\dot{\gamma}$. This waiting time of 60 s is sufficient to reach the steady state regime. Indeed, in the inset of Fig. 2.19, the strain linearly evolves with time from $t = 10$ s to $t = 1800$ s. This yields the evolution of the suspension viscosity $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$ as a function of the shear stress or the shear rate, in steady state regime. Under such conditions, $\dot{\sigma} = \ddot{\gamma} = 0$ and Eq.(2.20) can be written as :

$$\sigma = \frac{G_M\dot{\gamma} + \eta_H\dot{\gamma}^2/\gamma_c}{f_b + \dot{\gamma}/\gamma_c} = \frac{\sigma_f + \eta_H\dot{\gamma}}{\dot{\gamma}_c/\dot{\gamma} + 1} \tag{2.26}$$

$$\Rightarrow \eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} = \frac{G_M + \eta_H\dot{\gamma}/\gamma_c}{f_b + \dot{\gamma}/\gamma_c} = \frac{\eta_0 + \eta_H\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_c}{1 + \dot{\gamma}/\dot{\gamma}_c} \tag{2.27}$$

With $G_M = G + \eta_H f_b = \eta_0 f_b$, $\sigma_f = G_M \gamma_c$, $\dot{\gamma}_c = \gamma_c f_b$.

In the absence of vibrations ($f_b = 0$) or for $f_b \ll \dot{\gamma}(t)/\gamma_c$, Eqs.(2.26) and (2.27) transform into :

$$\sigma = G\gamma_c + \eta_H \dot{\gamma} = \sigma_f + \eta_H \dot{\gamma} \tag{2.28}$$

$$\Rightarrow \eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} = G\frac{\gamma_c}{\dot{\gamma}} + \eta_H \tag{2.29}$$

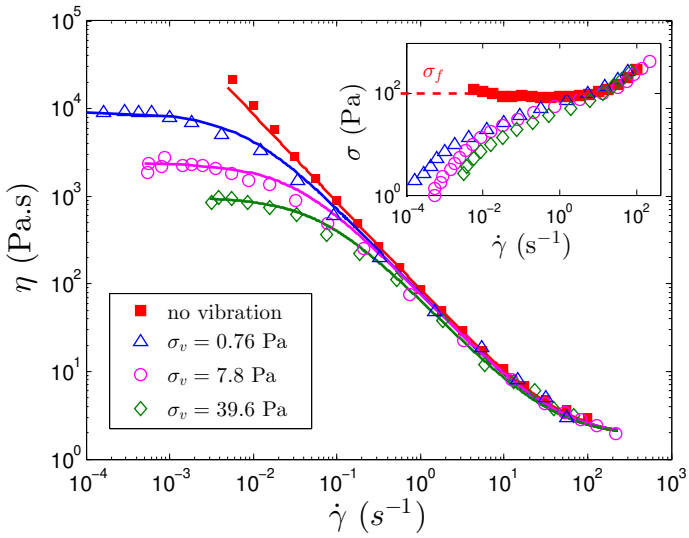


FIGURE 2.20 – (Color online) Steady state viscosity (η) versus shear rate ($\dot{\gamma}$) for various values of vibration stress (σ_v), for 335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox water mixture, $\phi \approx 0.61$. The particular case ($f = 50$ Hz and $A = 287$ μm) is represented by circles. The full lines display the fit of Eq.(2.27) to experimental data. The inset shows the evolution of the shear stress (σ) as a function of the shear rate ($\dot{\gamma}$), for the same data.

Figure 2.20 displays the flow curves obtained for our "illustrative" sample for various values of the vibration stress σ_v. The curve obtained for $\sigma_v = 0$ is also displayed on this figure. In the presence of vibrations, whatever σ_v, the rheograms exhibit a first Newtonian plateau at low shear ($\eta \to \eta_0$ when $\dot{\gamma} \to 0$), followed by a shear thinning zone and an inflection which tends towards a second Newtonian plateau at high shear ($\eta \to \eta_H$ when $\dot{\gamma} \to \infty$). Such a behavior concurs with the predictions of Eqs.(2.26) and (2.27) that can then be used to fit the experimental data (solid lines in Fig. 2.20). In the case corresponding to the data presented in Fig. 2.19 ($f = 50$ Hz and $A = 287$ μm $\Rightarrow \sigma_v = 7.8$ Pa), the fit yields $\eta_0 = G_M/f_b = 2375$ Pa, $\dot{\gamma}_c = \gamma_c f_b = 0.034$ s^{-1} $\Rightarrow \sigma_f = G_M\gamma_c = \eta_0\dot{\gamma}_c = 81$ Pa and $\eta_H = 1.8$ Pa.s. This latter value agrees with the values obtained in [90] for volume fractions varying between 0.56 and 0.6. It is worth pointing out that the value of η_0 (2375 Pa.s) deduced from flow

experiment is very close to that determined by stress steps experiments (2350 Pa.s). In the absence of vibrations, the rheogram displays a transition between a frictional Coulombian regime at low shear ($\sigma \to \sigma_f$ when $\dot{\gamma} \to 0$) and a viscous Newtonian regime at high shear ($\eta \to \eta_H$ when $\dot{\gamma} \to \infty$), which agrees with Eqs.(2.28) and (2.29). This frictional behavior is also observed in dry granular samples [25, 83, 123, 84]. The inset of Fig. 2.20 shows that the flow curve is non monotonic, as observed and discussed in [83, 84]. In the following, we focus on the behavior of vibrated granular suspensions. The frictional stress σ_f represents the yield stress of the sample. A fit of the data yields $\sigma_f = G\gamma_c =$ 91 Pa and $\eta_H = 1.8$ Pa.s. This latter value is the same as that obtained under vibrations (1.8 Pa.s) whereas the value of the frictional stress σ_f (91 Pa) is close to that obtained under vibrations (81 Pa). Furthermore, it is useful to compare these values with the one that can be theoretically evaluated by Coulomb$'s$ law $\sigma_f = \mu P_g$, where μ is the effective friction coefficient of the medium and P_g the average granular pressure defined by $P_g = \Delta\rho\phi g z$ [90]. By considering $\mu \approx 0.5$ and $z \approx 0.025$ m, $\sigma_f \approx 100$ Pa, i.e a value close to those derived from the fits (81 Pa and 91 Pa). The inset of Fig. 2.20 further reveals that the flow curves obtained in the presence and absence of vibrations merge for $\sigma = \sigma_f \approx 90$ Pa. As already shown [90], the value $\sigma = \sigma_f$ marks the transition from a regime dominated by vibrations at low shear to a regime dominated by shear flow at high shear. Such a change of regime is well captured by the model we develop in the present paper.

2.4.5.2 Response to a continuous stress ramp

In the case of a continuous stress ramp (Table 2.3), Eq.(2.20) becomes :

$$\frac{\eta_H \gamma_c}{\dot{\sigma}} \quad \ddot{\gamma} + \left(\frac{G_M \gamma_c}{\dot{\sigma}} - t \right) \dot{\gamma}(t) + \frac{\eta_H}{\dot{\sigma}} \dot{\gamma}^2(t) = \gamma_c + \gamma_c f_b t \tag{2.30}$$

With $G_M = G + \eta_H f_b = \eta_0 f_b$.

Figure 2.21 displays the temporal evolution of the strain $\gamma(t)$ for a ramp at $\dot{\sigma} = 1$ Pa.s^{-1} for the "illustrative" sample under vibrations ($f = 50$ Hz, $A = 287$ μm). As shown by the solid line in Fig. 2.21, the experimental data can be well fitted by the model after a numerical resolution of Eq.(2.30) using a RK4 method. This resolution yields $\eta_H = 3.2$ Pa.s, $\sigma_f = 67$ Pa, $\gamma_c = 0.45$ and $\dot{\gamma_c} = 0.036$ s^{-1}. From these values, it is possible to determine in addition, $\eta_0 = \sigma_f/\dot{\gamma}_c = 1861$ Pa.s, $G_M = \sigma_f/\gamma_c = 149$ Pa, $f_b = \dot{\gamma}_c/\gamma_c = 0.08$ s^{-1}. Values thus obtained for γ_c, $\dot{\gamma}_c$, σ_f, G_M, η_0, and f_b are rather close to those obtained from step stress experiments. In contrast, the value of η_H (3.2 Pa.s) is significantly higher

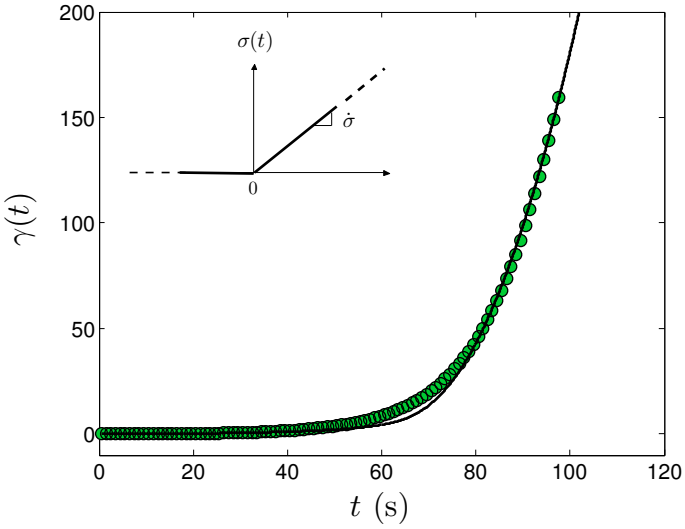


FIGURE 2.21 – Temporal evolution of the strain $\gamma(t)$ for a continuous stress ramp realized at $\dot{\sigma} = 1$ Pa.s^{-1}, for 335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox water mixture, under vibrations ($f = 50$ Hz and $A = 287$ μm). The full line represents the fit of the numerical integration of Eq.(2.30) to experimental data.

than that obtained previously (1.8 Pa.s). Such a discrepancy likely arises from a lack of measurements for times higher than 100 s, i.e. for stresses higher than 100 Pa, which prevents a precise determination of η_H.

2.4.5.3 Response to a sinusoidal stress

In the case of a sinusoidal stress ($\sigma(t) = \sigma_o cos(\omega t)$) (Table 2.3), Eq.(2.20) can be written as :

$$\begin{aligned} \eta_H \ddot{\gamma}(t) + \left(G_M - \frac{\sigma_o \cos(\omega t)}{\gamma_c}\right)\dot{\gamma}(t) + \eta_H \frac{\dot{\gamma}^2(t)}{\gamma_c} &= -\sigma_o \omega \sin(\omega t) + f_b \sigma_o \cos(\omega t) \\ &= -\sigma_o \left(\omega^2 + f_b^2\right)^{1/2} \sin(\omega t - \delta) \end{aligned} \tag{2.31}$$

With tan$\delta = f_b/\omega$, δ being the phase angle between $\sigma(t)$ and $\gamma(t)$ [118]. In our experimental conditions, $60^o \leq \delta \leq 90^o$, so $\sin(\omega t - \delta) \approx -\cos(\omega t)$, which leads in Eq.(2.31) to :

$$\eta_H \ddot{\gamma}(t) + \left(G_M - \frac{\sigma_o \cos(\omega t)}{\gamma_c}\right)\dot{\gamma}(t) + \eta(\phi)\frac{\dot{\gamma}^2(t)}{\gamma_c} = \sigma_o \left(\omega^2 + f_b^2\right)^{1/2} \cos(\omega t) \tag{2.32}$$

The relevance of the model is first analyzed by performing a stress sweep test at a fixed ω value of 1 rad.s^{-1}, as described in the Experimental section. This experiment allows extracting values for the

phase angle δ, the amplitude of the oscillatory stress σ_o and of the oscillatory strain γ_o. In parallel, for each given value of σ_o, the numerical resolution of Eq.(2.32) by a RK4 method yields $\dot{\gamma}_o$. Figure 2.31 displays the evolution of the maximum amplitude of the strain rate $\dot{\gamma}_o = \omega\gamma_o$ for our "illustrative" sample under vibrations (f = 50 Hz, A = 287 μm). As shown, by the thick black line in Fig. 2.31, Eq.(2.32) is able to reproduce experimental data and the fit to the data yields $\gamma_c = 0.43$, $\dot{\gamma}_c = 0.034$ s^{-1}, $\sigma_f = 86$ Pa and $\eta_H = 2.9$ Pa.s, $f_b = 0.079$ s^{-1}, $\eta_0 = 2529$ Pa.s and $G_M = 200$ Pa. All these values are close to those determined via the creep tests or the stress ramp experiment with η_H displaying a value that is intermediate between that determined via the step stress (1.8 Pa.s) and via the stress ramp (3.2 Pa.s). However, we can notice that the model does not well capture the curvature of the experimental data set. Several internal timescales are probably involved and taking into account a distribution of these relaxation times in the model would improve the fit of the data.

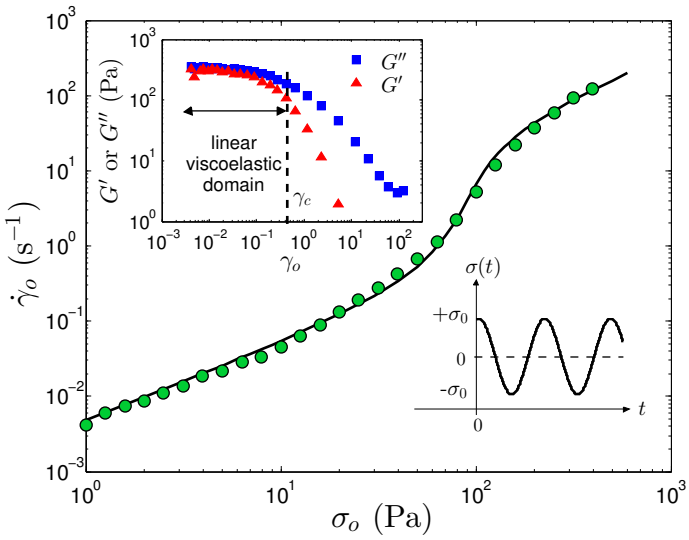


FIGURE 2.22 – Evolution of the maximum amplitude of the shear rate ($\dot{\gamma}_o$) as a function of the maximum amplitude of the shear stress (σ_o), at ω = 1 rad.s^{-1}, for 335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s, under vibrations (f = 50 Hz and A = 287 μm). The full line represents the fit of the numerical integration of Eq.(2.32). The inset displays the evolution of the elastic modulus G' and the viscous one G'' as a function of the strain (γ_o).

It is then relevant to report the thus determined value of γ_c on the curves displaying the evolution of the elastic (G') and viscous (G'') modulus as a function of the strain γ_o (inset of Fig. 2.22). As mentioned in [104], it clearly appears that γ_c is indeed a critical strain that defines the end of the linear viscoelastic domain.

To further test the consistency of the model, it is worth carrying out a frequency sweep test at fixed σ_o value of 5 Pa, i.e. in the linear viscoelastic domain. In the limit of small stresses, it is possible

to use the similarity between Eq.(2.22) and the Maxwell-Jeffreys model to yield expressions for both G' and G''.

$$G' = G_M \frac{\lambda_M^2\omega^2 - \lambda_M\lambda_J\omega^2}{1+\omega^2\lambda_M^2} \tag{2.33}$$

$$G'' = G_M \frac{\lambda_M\omega + \lambda_M^2\lambda_J\omega^3}{1+\omega^2\lambda_M^2} \tag{2.34}$$

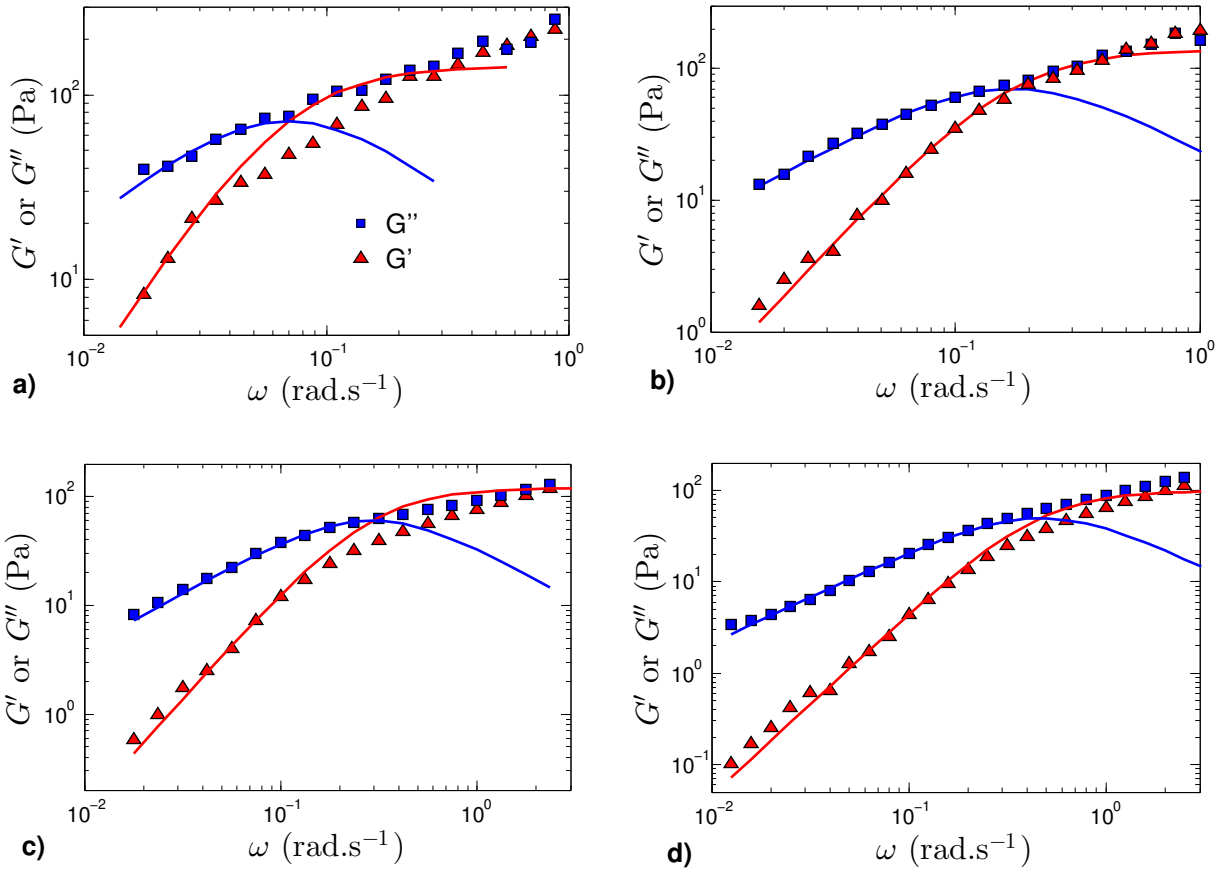


FIGURE 2.23 – Evolution of the elastic modulus (G') and the viscous one (G'') as a function of the angular frequency (ω), at $\sigma_o = 5$ Pa. The full lines represent the fit of experimental data by Eqs. (2.33) and (2.34) (Maxwell Jeffrey model). The different cases (a), (b), (c) and (d) are defined in Table 2.4.

Figure 2.23(a) displays the evolution of G' and G'' as a function of the angular frequency ω for our "illustrative" sample under vibrations ($f = 50$ Hz, $A = 287$ μm). The best fit of the experimental data by Eqs.(2.33) and (2.34) yields $G_M = 143$ Pa, $\lambda_M = 14.3$ s. The value of λ_J is however too low for a proper determination. to be experimentally determined with this test. The fit of the experimental data in this case remains rather poor, as the range in which experimental and fitted G' and G'' values agree

is limited. Still, the values obtained for G_M and for the associated parameters $f_b = 1/\lambda_M = 0.07$ s^{-1} and $\eta_0 = G_M/f_b = 2401$ Pa.s are close to those previously determined from other rheological tests. The poor quality of the fit is likely due to experimental problems as shown by Fig.2.23(b), (c) and (d) that display fits corresponding to other experimental conditions (Table 2.4) that are much more convincing at least at low and medium frequency where G' evolves as ω^2 and G'' evolves as ω with $G'' > G'$ in agreement with Eqs.(2.33) and (2.34). However in the high frequency region, experimental G' and G'' are equal and evolve as $\omega^{1/2}$, a behavior that is not predicted by Eqs.(2.33) and (2.34). This problem is likely related to the fact that the model only considers two characteristic times, λ_M and λ_J. Whereas λ_M can be assigned to the average time between two cage breaking events [104], the status of λ_J is much less clear. The flow of granular suspensions at short times likely implies numerous relaxation mechanisms that could be taken into account only by introducing a distribution of relaxation times.

TABLE 2.4 – Values of the model parameters, the shear modulus G_M and the reorganization frequency f_b, for different values of bead size (d), fluid viscosity (η_f), vibrations frequency (f) and amplitude (A).

Case	d (μm)	η_f (mPa.s)	f (Hz)	A (μm)	Pe_{lub} (-)	G_M (Pa)	f_b (s^{-1})
(a)	335	67.8	50	287	0.18	143	0.07
(b)	335	67.8	40	627	0.31	140	0.17
(c)	100	67.8	40	627	0.61	120	0.29
(d)	100	40	40	627	1.03	99	0.47

2.4.5.4 Consistency of the model

In the previous sections, different rheological experiments were confronted with predictions from differential equation (2.20) and it was shown that this equation was indeed adapted for describing rheological responses of granular suspensions to stationary and non stationary stresses in the presence or absence of vibrations, in linear and non linear regime. If η_f equals 0, the differential constitutive equation (2.20) reduces to the one developed by Marchal *et al.* [118] describing accurately the viscoelasticity of dry granular materials. Still, as the parameters obtained from application of Eq.(2.20) are based on a fit of experimental data, it is crucial to test if the values thus obtained from different rheological experiments are consistent. With that goal, Table 2.5 summarizes the numerical values of the model parameters obtained for our "illustrative" sample (335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture) subjected to a vibration stress $\sigma_v = 7.8$ Pa ($A = 287$ μm, $f = 50$ Hz).

Parameters reported in Table 2.5 appear nearly constant within experimental errors, which reveals

TABLE 2.5 – Values of the model parameters, for 335 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture, subjected to vibrations (f = 50 Hz, A = 287 μm). The numerical values in brackets have been obtained by taking $\gamma_c = 0.43$, value obtained with the stress sweep experiment.

Test \ Model parameters	G_M (Pa)	f_b (s^{-1})	γ_c (-)	$\eta_0 = G_M/f_b$ (Pa.s)	$\sigma_f = G_M\gamma_c$ (Pa)	$\dot{\gamma}_c = \gamma_c f_b$ (s^{-1})	η_H (Pa.s)
Stress step							
- Creep (Fig. 2.19)	202	0.086	(0.43)	2356	(87)	(0.037)	(-)
- Steady state flow (Fig. 2.20)	(188)	(0.079)	(0.43)	2375	81	0.034	1.8
Continuous stress ramp (Fig. 2.21)	149	0.08	0.45	1861	67	0.036	3.2
Sinusoidal stress							
- Stress sweep (Fig. 2.22)	200	0.079	0.43	2529	86	0.034	2.9
- Frequency sweep (Fig. 2.23)	143	0.07	(0.43)	2401	(61)	(0.03)	(-)

their independence on the nature of the rheological experiment performed (stress step, stress ramp, sinusoidal stress). The model developed in the present paper is then consistent, which allows using it to analyze the evolution of the four parameters (G_M, γ_c, f_b, η_H) as a function of the bead size, the fluid viscosity and the vibration stress.

2.4.6 Evolution of the model parameters as a function of Pe_{lub}

The differential equation [2.20 uses only four independent parameters for capturing the various rheological behaviors i.e., the shear modulus G_M, the critical strain γ_c, the Brownian reorganization frequency f_b and the viscous parameter η_H. In the section, we want to explore the evolution of these parameters as a function of vibrations (amplitude A, frequency f), suspending fluid viscosity (η_f) and bead size (d). As mentioned in the introduction section and first proposed by [90], these three quantities can be taken into account by defining one single dimensionless number, the lubrication Peclet number Pe_{lub} defined as $Pe_{lub} = \sigma_{lub}/\sigma_f$ with σ_{lub}, the lubrication stress defined as $\sigma_{lub} = \dfrac{\eta_f A(2\pi f)}{d}$ and the frictional stress defined as $\sigma_f = \mu P_g$, where μ the effective friction coefficient of the medium and P_g the granular pressure. In the following, we will then examine the evolution of the four parameters obtained from applying the proposed model, as a function of Pe_{lub} (Fig. 2.24). The experiments considered here are the stress step and the sinusoidal stress.

Figure 2.24 (a) suggests that the shear modulus G_M is independent of Pe_{lub} with a constant value

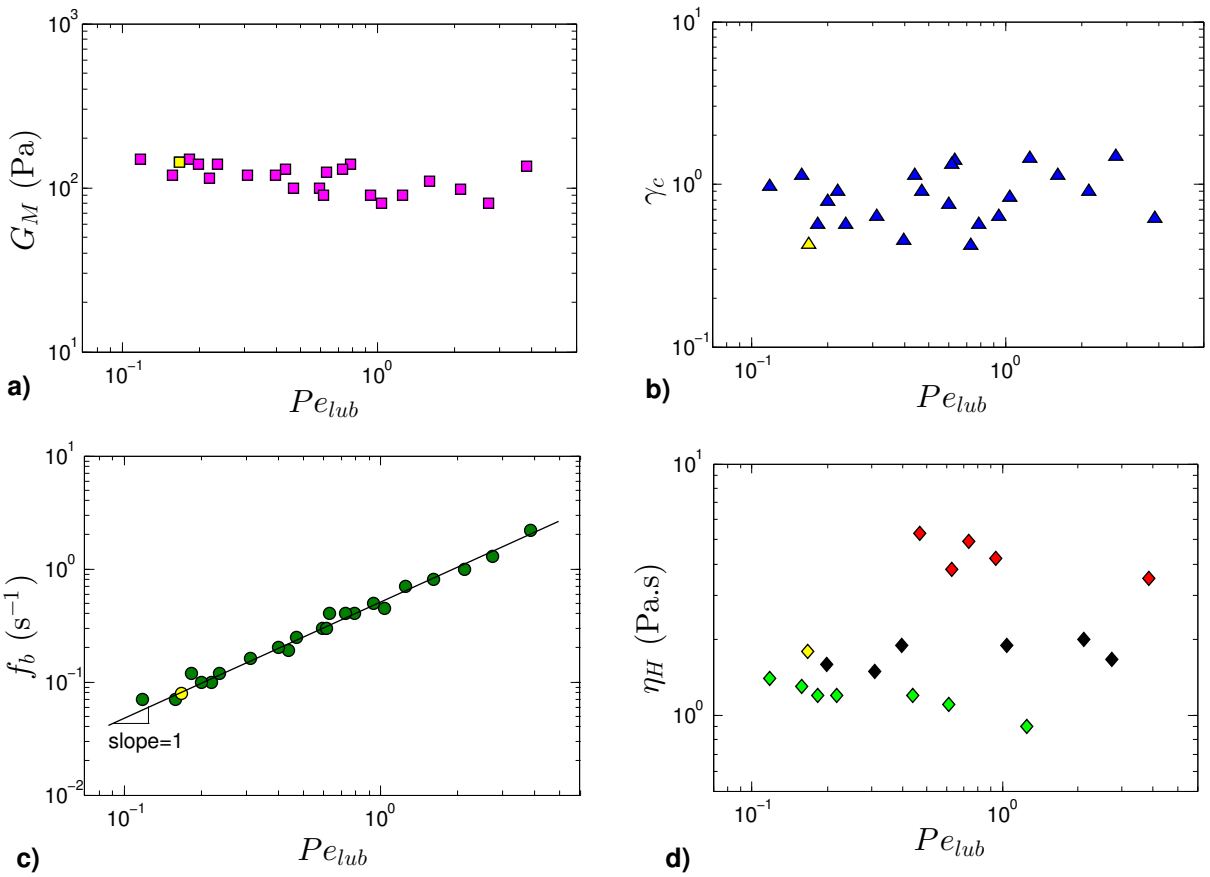


FIGURE 2.24 – Evolution with the lubrication Peclet number ($Pe_{lub} = \frac{\sigma_l ub}{\sigma_f} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{d\mu P_g}$) of (a) the shear modulus (G_M), (b) the critical strain (γ_c), (c) the Brownian reorganization frequency (f_b) for different values of fluid viscosity, bead size, frequency and amplitude vibrations. (d) Viscous parameter (η_H) for $\eta_f = 40$ mpa.s (red diamond), 67.8 mPa.s (black diamond) and 160 mPa.s (red diamond). The yellow symbols represent the values obtained for the particular case studied in section 2.4.5.

of $G_M = 116 \pm 34$ Pa. Such an independence is confirmed by Fig. 2.24 (b) in which the critical strain γ_c also appears to be independent of Pe_{lub} with a constant value of 0.82 ± 0.39. Indeed, in the model, G_M is linked to γ_c through the relation $\sigma_f = G_M \gamma_c$ and as σ_f is independent of fluid viscosity, bead size and vibrations stress, a constancy of G_M implies a constancy of γ_c. In addition, these observations confort the interpretation proposed by [104], in which γ_c was considered as a critical strain corresponding to the onset of contacts breaking. In contrast, Fig. 2.24 (c) clearly reveals a dependence of the reorganization frequency f_b on Pe_{lub}, f_b increasing linearly with Pe_{lub}. Such a behavior is consistent with mechanical spectroscopy measurements and MSDWS experiments that showed that the measured relaxation time scaled as $1/Pe_{lub}$ [104]. As $f_b = 1/\lambda_M$ where λ_M is the average time between two cage breaking events, the trend exhibited in Fig. 2.24 (c) confirms the link between Pe_{lub} and dynamical parameters. Finally,

the representation of η_H versus Pe_{lub} in Fig. 2.24 (d) does not allow to extract a clear dependence of η_H with the others parameters. However such an evolution can be rationalized by recalling that η_H corresponds to the second Newtonian plateau that appears at high shear stress (Fig. 2.20). In this high shear regime, the evolution of suspension viscosity can be well described using Quemada′s law [71] $\eta = \eta_f(1 - \frac{\phi}{\phi^*})^{-2}$ with ϕ^* the maximum volume fraction. Therefore, for a fixed volume fraction, i.e. the situation analyzed in the present study, it may be expected that the suspension viscosity η (or η_H) is proportional to the viscosity of the suspending fluid η_f, independently of the frequency (f) and the amplitude (A) of vibrations and the bead size d. In Fig. 2.25, we display the same experimental data as a function of η_f instead of Pe_{lub} for a better representation. A clear linear dependence is then observed, which confirms that the suspension behavior is well described by Quemada′s law [71].

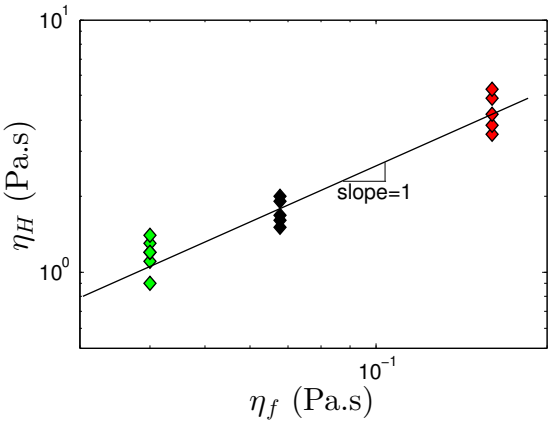


FIGURE 2.25 – Viscous parameter (η_H) as a function of the fluid viscosity (η_f).

2.4.7 Discussion

The simple phenomenological two state model presented in this article is inspired from the existence of two sub-networks, i.e. a strong one and a weak one, and well describes the flowing behavior of vibrated gravitational suspensions. This model also predicts the behavior of vibrated dry granular systems as shown in [118]. The rheological equations derived from this model capture the macroscopic properties of the flow. Our approach is closed to the STZ theory developed by [124, 125] for non vibrated granular systems and based on the existence of transitions induced by the external shear between accessible states. This model introduces a continuous distribution of accessible states which increases the number of free parameters (usually more than six parameters). Our model integrates the effect of vibrations and is simpler. We show that a simple two state approach can capture main

properties of the rheological behavior whatever the regime (linear, non linear, transient, steady state). Despite these differences, it would be interesting in the future to extend our approach and to introduce the effect of vibrations in an STZ approach. In particular an introduction of a distribution of accessible states could be interesting to explain the behavior of G'/G'' at high frequencies.

Our work shows that for fluid saturated or dry granular systems, vibrations have a drastic influence on the inter-grains contact network which causes a decrease of the apparent viscosity at low shear rates. In the two cases, the contact network reorganization time induces by vibrations is shorter than the typical deformation time induced by the flow. For granular suspensions at larger applied shear rates, a transition from a frictional to a viscous behavior is predicted by the model as previously experimentally observed in the literature for non-vibrated systems [22, 27, 57]. This transition usually comes with local effects such as flow heterogeneities, dilatancy, shear localization or particles migrations [28, 52, 41, 46, 36] which have extensively been reported in the literature. Owing to his nature (ensemble average theory), our model cannot capture the heterogeneities of the flows but predicts its global macroscopic behavior. The latter results from the superposition of the previously mentioned local effects but is accessible from usual rheological measurements. Recent advances in the rheology of non vibrated granular suspensions [22, 27, 114] suggest that these systems exhibit a viscoplastic behavior described by a frictional rheology controlled by a viscous number $I_v = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{P_g}$ [57]. This theory captures the rheology in the absence of vibrations but fails to predict the rheological behavior of vibrated systems. Contrary to usual suspensions, our result show that the rheological behavior of vibrated granular suspensions is entirely controlled by vibrations (Pe_{lub} number) and the reorganization of the contact network at low shear rate.

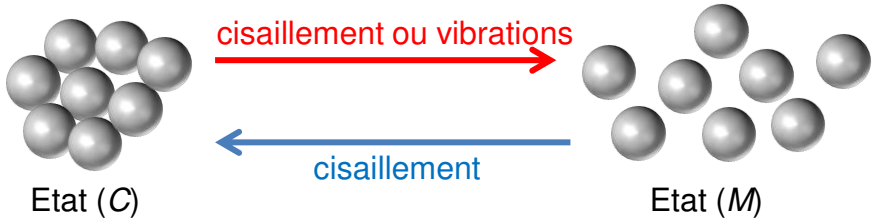
2.4.8 Conclusion

In this paper, we have developed a model for predicting the rheological response of both dry and wet granular media to stationary and non stationary mechanical stresses, in the presence or absence of vibrations. The major assumption underlying this model is that the behavior of a granular material is controlled by the dynamics of the contact network. Consequently, a kinetic equation describing the transitions between the consolidated state (C) and the mobile state (M) should be able to capture the rheological response of these materials. The differential constitutive equation built from these considerations involves only four adjustable parameters (G_M, γ_c, f_b, η_H) and allows predicting the experimentally observed Newtonian regimes at low and high shear or the Maxwellian behavior at long

times. Through extensive testing, we have been able to prove that these the four parameters do not depend on the type of test used (stress step, continuous stress ramp, sinusoidal stress) to determine them for this vane geometry. It is particularly noteworthy that this model well describes the shear thinning behavior of the suspensions, which suggests that it may also be applied to classical Brownian suspensions, a statement that clearly deserves further investigation. The main flaw of the model lies in its inadequacy in describing frequency sweep measurements at high angular frequency. This problem may be linked to the fact that the model only considers two characteristic times whereas the flow of granular suspensions likely involves numerous relaxation processes. It would then be of interest to try incorporate a continuous distribution of relaxation times in the model for reproducing complete mechanical spectra.

Résumé : Le modèle est basé sur une approche phénoménologique à deux états de la dynamique du réseau de contacts. La transition entre un état consolidé (C) et un état mobile, déconnecté (M) peut être décrite par l'équation cinétique suivante :

$$\dot{P}_C(t) + (\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b)P_C(t) = c_2\dot{\gamma}(t)$$



En reliant $P_C(t)$, la probabilité d'occupation de l'état (C), à la contrainte de cisaillement totale $\sigma(t)$, le modèle prend alors la forme d'une équation différentielle constitutive reliant $\sigma(t)$ au taux de cisaillement $\dot{\gamma}(t)$ telle que :

$$\dot{\sigma}(t) + \left(\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right)\sigma(t) = G_M\dot{\gamma}(t) + \eta_H\frac{\dot{\gamma}^2(t)}{\gamma_c} + \eta_H\ddot{\gamma}$$

Le modèle contient 4 paramètres ajustables, intrinsèques au système :

- le module de cisaillement G_M (Pa)
- la fréquence de réorganisation granulaire f_b (s^{-1})
- la déformation critique γ_c (-) reliée à la fin du réseau de particules en contact
- la viscosité de la suspension à haut cisaillement η_H (Pa.s)

En utilisant une approche en champ moyen, le modèle est capable de prédire le comportement d'une suspension granulaire dense en conditions stationnaires ou instationnaires, en régime linéaire ou non linéaire, avec ou sans vibrations, en sec ou en saturé. Il est alors en mesure de prédire les différents comportements expérimentalement observés, tels que le régime newtonien et frictionnel coulombien ou encore le comportement viscoélastique maxwellien.

2.5 Ouverture : application aux suspensions granulaires bidisperses

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes intéressés au comportement rhéologique de suspensions granulaires composées de particules monodisperses. Nous avons également mené des expériences avec le rhéomètre à poudres sur des suspensions granulaires composées de particules bidisperses, à savoir des billes de verre de 100 μm et de 530 μm. Nous avons testé l'influence de la viscosité du fluide interstitiel et de la contrainte de vibration sur la viscosité de la suspension en écoulement en fonction de la fraction en grosses particules. De même que pour les particules monodisperses, les vibrations font apparaitre un plateau newtonien de viscosité η_0. Cette viscosité de plateau est également contrôlée par le nombre de Péclet de lubrification, à condition de définir un diamètre effectif fonction de la fraction en grosses particules. En utilisant une approche de type volume libre, nous sommes en mesure de pouvoir décrire l'écolution de la viscosité de la suspension en fonction de la fraction en large particules, pour différentes valeurs de viscosité de fluide ou de contrainte de vibration. Ces résultats sont présentés tels qu'ils ont été soumis à *Rheologica Acta* (2014).

2.5.1 Abstract

In this paper, we investigate the dependence of the viscosity of vibrated bidisperse granular suspensions of spherical particles on the relative fraction of the two populations. At the same total volume fraction ϕ, the viscosity of the bidisperse suspension is lower than that of a monodisperse suspension. A viscosity model is derived using an effective free volume approach based on the definition of an equivalent mean diameter, a maximum packing fraction and an overlap factor. The resulting model accounts for the fraction in large particles ξ, the viscosity of the suspending fluid η_f, the amplitude A and the frequency f of the vibrations, for a constant ratio of the diameters of the beads $\lambda = 5.3$ and a fixed value of the total volume fraction $\phi \approx 0.61$. It led to a general equation describing both the rheology of monodisperse and bidisperse suspensions.

2.5.2 Introduction

Mechanical properties of suspensions of non-Brownian particles control numerous natural phenomena such as landslides, avalanches and debris flows. Such suspensions are, in addition, of prime importance in a wide range of industrial applications. These materials exhibit complex rheological properties (shear localization, size segregation, particle migration) that cannot be understood within

the scope of standard solid or liquid mechanics. We focus our attention on gravitational suspensions, i.e. suspensions where particles are denser than the suspending fluid, relevant to study most of situations listed above. A major difficulty associated to these systems is that the initial state of the suspension at rest cannot be properly defined, due to their athermal character, and the system can therefore jam far from equilibrium. A way to overcome this problem is to submit the system to vibrations. It has been shown that the use of a such mechanical energy is analogous to the use of thermal energy for Brownian systems [78, 96]. In that context, we recently studied in detail the rheological behavior of concentrated suspensions of monodisperse particles subjected to coupled shear and vibrations [90, 104]. Applying any finite vibration amplitude suppresses the yield stress of gravitational suspensions that, under vibration, behave as viscous fluids. Their viscosity varies with particle size, suspending fluid viscosity, and vibration amplitude and frequency. All these variations can be rationalized by introducing a Peclet number defined as the ratio between the lubrication stress and the granular pressure. However, in most real situations, whether natural or industrial, suspensions are usually polydisperse. For this reason, numerous researchers have investigated the rheological behavior of bimodal suspensions of hard spheres under shear, using both experimental and/or numerical approaches [61, 62, 126, 127, 128, 129, 130, 131, 132]. All found that the suspension viscosity depends on the volume fraction, the fraction in large particles and the size ratio between large and small particles. For instance, the viscosity of a bidisperse suspension is systematically lower than that of monodisperse suspension. In view of the potential importance of such a result for applications, it is then essential to analyze if the trends observed for suspensions at rest extend to vibrated systems. In the present paper we first recall shortly some results previously obtained on the rheological behavior of monodisperse suspensions subjected to vibrations and analyze in detail the volume fraction dependence of the viscosity of such suspensions. On this basis, we can then investigate in depth the rheological behavior of bidisperse concentrated suspensions subjected to simultaneous vibrations and shear. We finally show that for bidisperse suspensions, the suspension viscosity can be deduced using an effective approach based on the definition of an effective mean diameter $\bar{d}$ and a maximum packing fraction ϕ^* that both depend on the volume fraction in large particles ξ.

2.5.3 Experimental section

2.5.3.1 Materials

We investigate the rheological behavior of dense gravitational suspensions composed of non-Brownian particles immersed in a Newtonian fluid subjected to simultaneous shear and vibrations. The studied material is made up of Whitehouse Scientific spherical glass beads ($\rho_p \approx 2400$ kg.m^{-3}) immersed in Emkarox-water mixtures ($\rho_f \approx 1032$ kg.m^{-3}). Two situations are analyzed, in which the particles are either monodisperse or bidisperse. In the monodisperse case, already studied in previous works, the bead sizes used range from 49 to 530 μm whereas fluid viscosities extend from 4.5 to 500 mPa.s. In the bidisperse case, one size ratio $\lambda = d_L/d_S$ is studied with a diameter $d_S = 100$ μm for the small beads and a diameter $d_L = 530$ μm for the large beads. Particles of both sizes are mixed together by successive layers and are then embedded in a given volume V_{fl} of fluid such as $\phi = \dfrac{V_S + V_L}{V_S + V_L + V_{fl}} = 0.61$ where ϕ is the total global volume fraction [15]and V_S and V_L the volume of small and large particles respectively. Small and large particles are mixed in different proportions at constant ϕ, leading to a known value of the fraction in large particles defined by $\xi = \dfrac{V_L}{V_S + V_L}$. Various degrees of bidispersity ranging from pure large beads ($\xi = 1$) to pure small ones ($\xi = 0$) are thus obtained. Three different values of fluid viscosity ($\eta_f = 12$; 68 and 165 mPa.s) are also used to investigate the influence of this parameter on suspension behavior.

2.5.3.2 Rheological measurements

Steady state flow experiments were carried out using a stress imposed rheometer (AR 2000, TA Instruments) coupled with a "powder cell" [25, 118]. This cell is composed of a four blades vane device (10 mm radius ; 30 mm length) installed into a cylindrical baffled cup (25 mm radius ; 5 mm baffle width) and is analogous to a virtual Couette cell with an annular gap of 10 mm [25].

The device is connected to a vibration shaker (Bruel & Kjr) controlled by a power amplifier, a function generator and an accelerometer. In the present case, the sample is subjected to vertical sinusoidal vibrations. By analogy to a shear stress, we can define a mechanical vibration stress σ_v expressed as the mechanical energy supplied to the system per unit volume of a harmonic oscillator of the same mass as the sample, hence $\sigma_v = 1/2\rho A^2(2\pi f)^2$ with ρ the density of the system, A and

15. The volume fraction ϕ determined by weighing is our control parameter. The effective volume fraction related to the rheological behavior of the sample is very close to ϕ. However it is modulated around this value since it depends on mechanical solicitations under consideration (shear and vibration).

f the amplitude and frequency of vibrations, respectively. Experiments were carried out at imposed shear stress (from 1 to 10^3 Pa) and the measured shear rate ranges from 10^{-3} to 4×10^2 s^{-1}. All data points were obtained at steady state. The influence of the vibration stress on the suspension viscosity is tested by subjecting the sample to different values of vibration frequency f = [10-80] Hz and amplitude A = [20 - 400] μm.

2.5.4 Results and discussion

2.5.4.1 Viscosity of concentrated monodisperse suspensions subjected to vibrations

Previous results. This section summarizes the main results obtained on the rheological behavior of vibrated monodisperse suspensions, in a previous paper [90]. Figure 2.26(a) presents the evolution of the sample viscosity η as a function of the shear stress σ, for various values of vibration stress σ_v. A transition regime clearly occurs at $\sigma \approx 100$ Pa between a regime controlled by the vibrations at low shear and a regime controlled by the shear flow at high shear. Indeed, for $\sigma \geq 100$ Pa, the flow curves carried out for different vibration energies overlap whereas for $\sigma \leq 100$ Pa, the viscosity depends on σ_v, higher vibration energy leading to lower viscosity. We showed that this particular stress value corresponds to the frictional stress σ_f defined by Coulomb's law $\sigma_f = \mu P_g$ with μ the inter-grain friction coefficient and P_g the average granular pressure defined by $P_g = \Delta\rho\phi g z$. $\Delta\rho$ is the relative density of the beads and fluids, ϕ the volume fraction, g the gravitational constant (9.81 m.s^{-2}), and z the depth at which the measurement is carried out (here $z \approx 0.025$ m). In the present case, for $\phi = 0.61$ and $\mu \approx 0.5$ (typical for glass beads [90]), the application of Coulomb's law yields $\sigma_f \approx 103 \pm 22$ Pa, in agreement with the experimental value of Fig.2.26(a). This frictional stress ensures the internal cohesion of the system.

In the high shear regime, we showed that the suspension behaves as classical Brownian [70] or non Brownian [20, 21, 27] suspensions. Indeed, the viscosity increases linearly with fluid viscosity η_f as displayed in Fig.2.26(b) and is independent of bead size (not shown here). In this previous paper (Fig.2 in [90]), we clearly evidenced that the variation of viscosity with volume fraction was well accounted for by Quemada's law defined by $\eta = \eta_f \left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right)^{-2}$ [71], where ϕ^* is the maximum packing fraction equal to 0.68 in the present case.

The viscosity behavior is strikingly different in the low shear regime. Under vibrations a viscosity plateau η_0 appears, the value of which decreases when η_f increases (Fig.2.26(b)). η_0 also depends on σ_v and is, in addition, proportional to bead size, as shown in Fig.2.26(c). All these effects can be

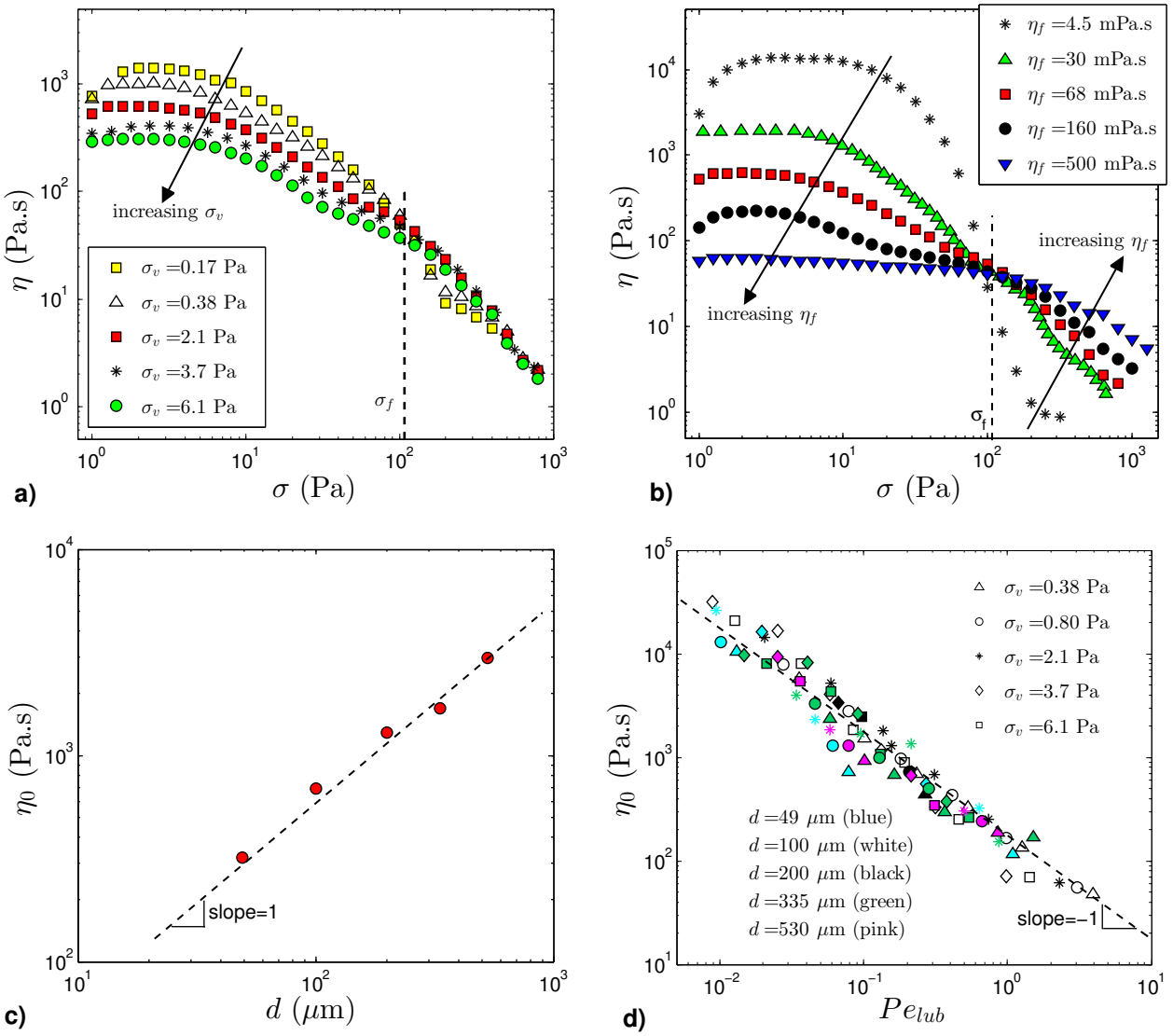


FIGURE 2.26 – (a) Viscosity (η) as a function of the shear stress (σ), for a monodisperse suspension made up of 100 μm glass beads immersed in a 68 mPa.s Newtonian fluid, for various values of vibration stress (σ_v). (b) Viscosity (η) as a function of the shear stress (σ), for the same sample, for various values of fluid viscosity (η_f), at σ_v = 2.1 Pa. (c) Low shear viscosity plateau (η_0) as a function of the bead diameter (d), for monodisperse particles immersed in a 68 mPa.s Newtonian fluid, at σ_v = 2.1 Pa. (d) Low shear viscosity plateau (η_0) as a function of the lubrication Peclet number ($Pe_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/\sigma_f d$), for different values of bead size, vibration stress, and fluid viscosity, adapted from [90].

TABLE 2.6 – List of the symbols used in Fig.2.27.

$d\,(\mu\text{m})$	η_f(mPa.s)	σ_v (Pa)	Symbols
49	113	0.38	○
49	113	2.1	△
49	113	6.1	□
100	49	0.38	●
100	49	2.1	▲
100	49	6.1	■
100	120	0.38	●
100	120	6.1	■
100	67	0.38	●
100	67	6.1	■
100	207	0.38	●
100	207	2.1	▲
100	207	6.1	■
200	80	0.38	○
200	80	2.1	△
200	80	6.1	□

taken into account by defining one dimensionless number, the lubrication Peclet number Pe_{lub} written as $Pe_{lub} = \sigma_{lub}/\sigma_f \propto \eta_f A(2\pi f)/\mu P_g d$. Pe_{lub} can be seen as the ratio between the lubrication stress $\sigma_{lub} \propto \eta_f A(2\pi f)/d$ that controls the repulsion between grains and facilitates their displacements and the frictional stress $\sigma_f = \mu P_g$ that ensures the internal cohesion of the packing. In Fig.2.26(d), when plotted as a function of Pe_{lub},the experimental data obtained for different values of vibration stress, fluid viscosity and bead size fall onto a single master curve and scale with the inverse of Pe_{lub}. When η_f increases, σ_{lub} also increases, which favors bead displacement and thus the decohesion of the system, which leads to a decrease of η_0.

Volume fraction dependence. In the regime controlled by vibrations, the suspension behavior is not similar to that of classical hard spheres suspensions, in contrast with the high shear regime that is fully controlled by shear flow. To further evidence such a statement, we analyze the volume fraction variation of the low shear viscosity plateau η_0. Figure 2.27(a) displays the evolution with volume fraction ϕ of

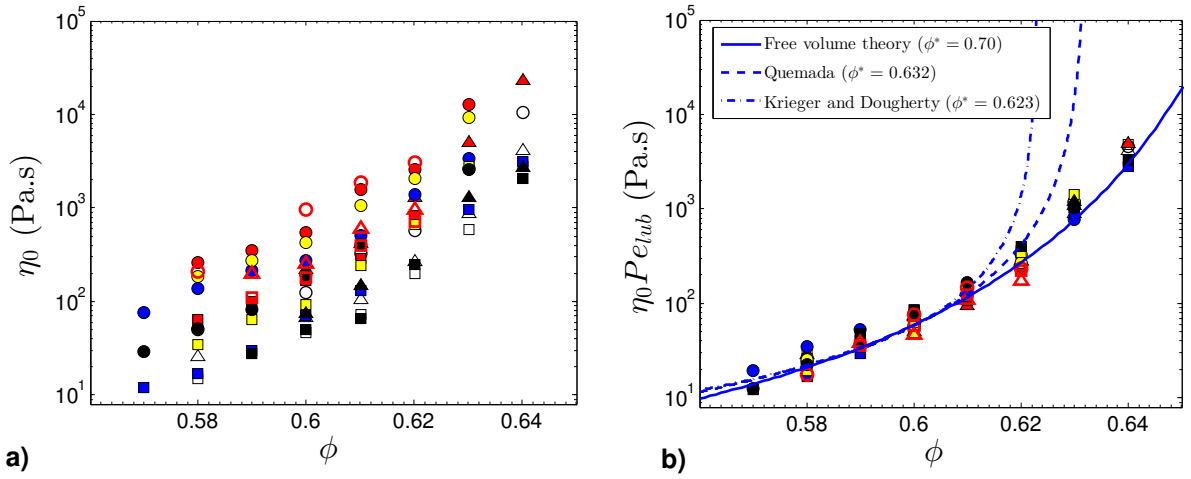


FIGURE 2.27 – (a) Low shear viscosity plateau (η_0) as a function of the volume fraction (ϕ) for various values of bead size (d), fluid viscosity (η_f) and vibration energy (σ_v), for monodisperse particles immersed in a Newtonian fluid. The symbols used are defined in Table 2.6. (b) Evolution of the product $\eta_0 Pe_{lub}$ as a function of the volume fraction (ϕ), where Pe_{lub} is the lubrication Peclet number defined by $Pe_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/\sigma_f d$. The solid line, the dashed line and the dotted line represent the fit of the experimental data respectively by the free volume model (Eq.(2.20)), Quemada's law [71] and Kriger and Dougherty's law [70].

η_0 for different values of bead size, fluid viscosity and vibration energies. Since $\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1}$, all data of Fig.2.27(a) gather on a single master curve when plotting $\eta_0 Pe_{lub}$ as a function of ϕ (Fig.2.27(b)), which confirms once again that η_0 is effectively controlled by this dimensionless number. Qualitatively, the shape of the curve displayed in Fig.2.27(b) is similar to the viscosity-concentration curve obtained in the high shear regime (Fig.2 in [90]), which was well accounted for by Quemada's law [71] or Krieger and Dougherty's law [70]. However, as revealed by Fig.2.27(b), using a similar expression as $a(1-\frac{\phi}{\phi^*})^{-2}$ with $\phi^* = 0.632$ and $a = 0.15$ (dashed line) or as $a(1-\frac{\phi}{\phi^*})^{-[\eta]\phi^*}$ with $[\eta] = 2.5$ (hard spheres), $a = 0.34$ and $\phi^* = 0.623$ (dotted line) corresponding to the best fit does not lead to a satisfactory agreement with experimental data. It then appears that, under vibrations, in the low shear regime, the volume fraction variation of η_0 cannot be described using models classically used for hard spheres suspensions, for instance Quemada's law or Krieger Dougherty's law.

This is likely due to the fact that under vibration, grain rearrangement dynamics plays a crucial role in defining suspension viscosity. In a previous paper [104], we indeed evidenced the importance of such dynamics by performing mechanical and diffusing wave spectroscopy measurements. Such a behavior is analogous to that of disordered molecular systems near their glass transition. The properties of such materials depend more on the kinetics and mutual rearrangements of the molecules than on their physicochemical nature. To rearrange themselves, molecules need some space defined as the free

volume. Based on this free volume approach, [133] showed that the diffusion coefficient D was linked to the free volume v_f in a liquid of hard spheres by the relation $D = C\exp(-\gamma v^*/v_f)$ where C is a constant, γ is a numerical factor accounting for the overlap of free volumes of particles varying between 0.5 and 1 and v^* is the minimum required local free volume allowing molecule diffusion. Such an equation relies on the assumption of a Boltzmann distribution of the free volume where the jump probability is only determined by the chance of finding an adjacent local free volume (v^*) large enough for allowing diffusive displacement. This model extends expressions derived empirically by [134] and [135]. Since the quantity v^* is close to v_0, the closed packed molecular volume, the hard sphere viscosity equation takes the form [136] :

$$\eta = C\exp(\gamma v_0/v_f) \tag{2.35}$$

As particles rearrangement dynamics play a crucial role for vibrated granular suspensions, it then clearly appears relevant to apply the free volume theory (2.35), initially developed for liquids, to our materials [25]. In our case, v_f represents the average free volume per grain and v_0 the average volume per grain at packing. Since $v_f = V_f/N_p$ and $v_0 = V_0/N_p$, with V_f the total free volume, V_0 the system volume at $\phi = \phi^*$ and N_p the total number of grains, Eq.(2.35) can then be written as :

$$\eta = C\exp(\gamma V_0/V_f) \tag{2.36}$$

Volumes V_f and V_0 can be related to volume fraction by :

$$V_0 = V_p/\phi^* \text{and} V_f = V - V_0 = V_p(1/\phi - 1/\phi^*) \tag{2.37}$$

Where V_p is the beads volume.

Moreover, as $\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1}$, the viscosity-volume fraction model used for monodisperse vibrated granular suspensions can be written as :

$$\eta_0 Pe_{lub} = B\exp\left(\frac{\gamma\phi/\phi^*}{1-\phi/\phi^*}\right) \tag{2.38}$$

Where B is a constant.

As shown by the solid line plotted in Fig.2.27(b), Eq.(2.38) accurately fits the experimental data and yields $B = 0.40$ Pa.s, $\phi^* = 0.70$ and $\gamma = 0.84$. Applying a free volume model to calculate suspension viscosity in the regime controlled by vibrations then appears as a relevant approach. Further evidence

for such a statement is provided by the ϕ^* value that lies in the range of values found in the literature, from 0.53 [131, 137] to 0.72 [138] for monodisperse particles and by the γ value that, according to [133], should lie between 0.5 and 1.

2.5.4.2 Low shear viscosity of concentrated bidisperse suspensions subjected to vibrations

Figure 2.28(a) presents the evolution of the sample viscosity η, as a function of the applied shear stress σ, for various values of vibration stress σ_v, for a bidisperse suspension with $\xi = 10$ %. As observed for monodisperse particles (Fig.2.26(a)), a transition occurs at $\sigma \approx 100$ Pa between a regime controlled by the vibrations at low shear and a regime controlled by the shear flow at high shear. This regime transition also clearly appears in Fig.2.28(b) that displays the flow curves obtained for two different values of fluid viscosity η_f, at a fixed value of σ_v, for the same bidisperse suspension. For $\sigma \geq \sigma_f$, the sample viscosity η increases with the fluid viscosity η_f whereas for $\sigma \leq \sigma_f$, the trend is reverse. In the previous section, we showed that the monodisperse suspension behaves as hard spheres suspensions in the high shear regime ($\sigma \geq 100$ Pa). Numerous works have been carried out to understand the rheological behavior of such materials, for monodisperse and bidisperse particles. For this reason, we focus in this article on the understanding of the rheological behavior of bidisperse suspensions at low shear, in the regime controlled by the vibrations. The high shear behavior will be treated in Appendix.

We first focus on the behavior of the low shear viscosity plateau η_0 as a function of fluid viscosity η_f, vibration stress σ_v and fraction in large particles ξ, for a fixed value of the size ratio ($\lambda = d_L/d_S = 5.3$) and for a fixed global volume fraction ($\phi = 0.61$) (Figure 2.28(c)). In all cases, the viscosity of a bidisperse suspension is lower than that of the corresponding monodisperse system. For instance, at $\xi = 0.2$, the viscosity is 4 % of that of a monodisperse suspension made up of small beads only ($\xi = 0$). Marginal changes in suspension composition therefore have drastic effects on viscosity, that are maximum for ξ around 0.4-0.6. Such a behavior is qualitatively similar to that observed for bidisperse suspensions of hard spheres under shear [59, 139]. However, some disagreement exists about the exact ξ value for which viscosity decrease is maximized. Values reported in the literature range between 0.4 [132] and 0.65-0.75 [126, 62], i.e. a range compatible with our experiments. Whatever the value of ξ, the viscosity η_0 of the bidisperse suspension exhibits the same qualitative dependencies with fluid viscosity and vibration energy as the viscosity of the monodisperse suspension. In the latter case, these dependencies can be taken into account through the dimensionless number $Pe_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\mu P_g d}$. It is then

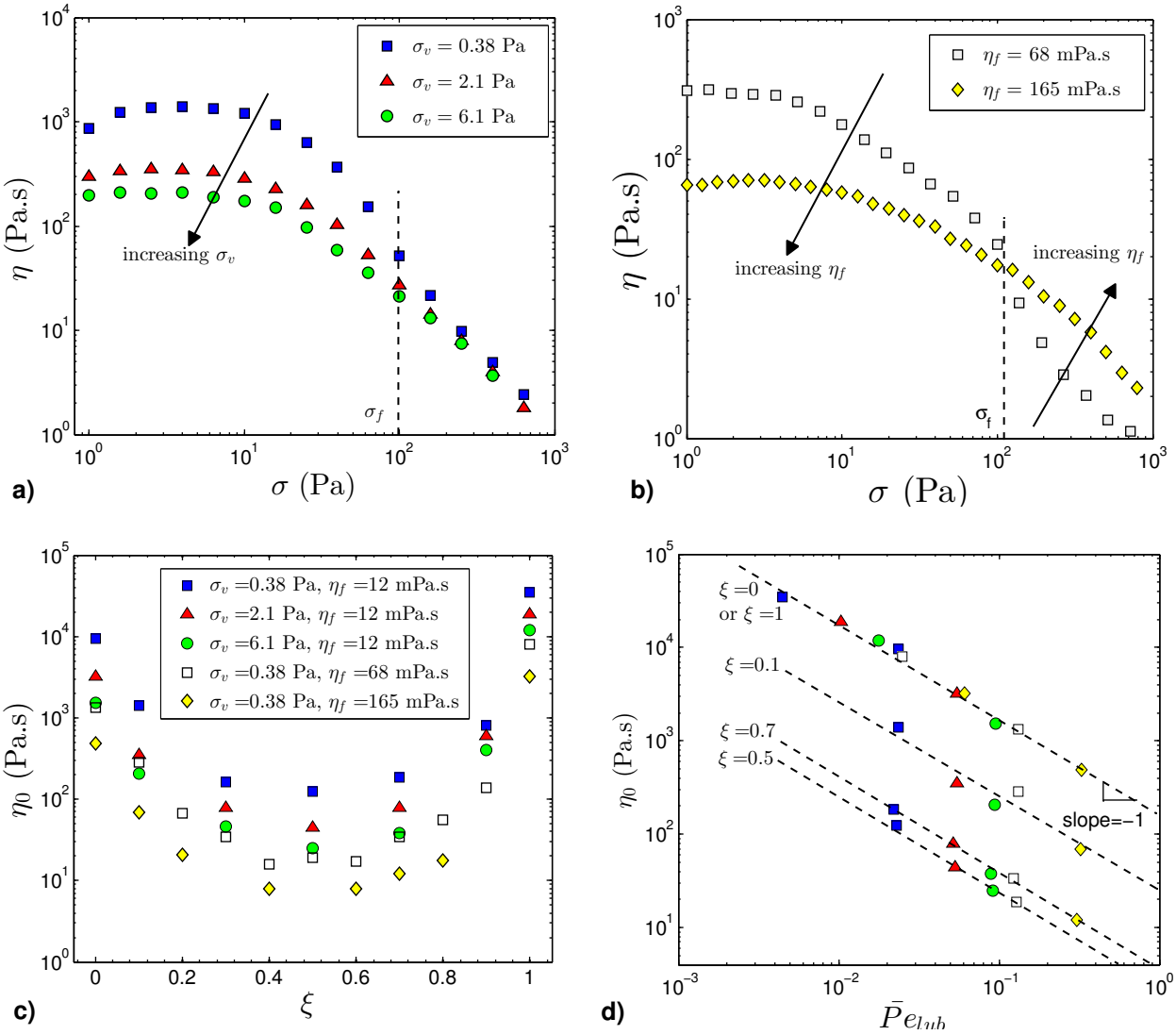


FIGURE 2.28 – (a) Viscosity (η) as a function of the shear stress (σ), for a bidisperse suspension made up of glass beads ($d_S = 100$ μm, $d_L = 530$ μm) at a fraction ξ of large particles of 10 % immersed in a 12 mPa.s Newtonian fluid, for various values of vibration stress (σ_v). (b) Viscosity (η) as a function of the shear stress (σ), for the same sample, for two values of fluid viscosity (η_f), at $\sigma_v = 0.38$ Pa. (c) Low shear viscosity plateau (η_0) as a function of the fraction in large particles (ξ), for various values of fluid viscosity and vibration stress. (d) The same experimental data plotted as a function of the lubrication Peclet number defined with an effective diameter ($\bar{P}e_{lub} = \eta_f(2\pi f)/\sigma_f\bar{d}$), where $\bar{d}$ is an effective diameter defined by Eq.(2.40-2.42), for various values of fraction in large particles (ξ).

worthwhile to see if the same approach can be applied to bidisperse suspensions by defining a new Peclet number, $\bar{Pe}_{lub}$, based on an equivalent effective diameter $\bar{d}$ that should depend on the relative fractions in large and small particles, such as :

$$\bar{Pe}_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\mu P_g \bar{d}} \tag{2.39}$$

Following the work of [140], $\bar{d}$ can be defined as the average diameter of the different sizes of the spheres, such as :

$$\bar{d} = d_S n_S + d_L n_L \tag{2.40}$$

Where d_S and d_L are the diameters of the small and large particles , respectively (in our case $d_S = 100$ μm, $d_L = 530$ μm), and n_S and n_L are the fraction number of small and large particles, respectively given by :

$$n_S = \frac{N_S}{N_S + N_L} = \frac{\lambda^3(1-\xi)}{\xi + \lambda^3(1-\xi)} = \frac{\phi_S/d_S^3}{\phi_S/d_S^3 + \phi_L/d_L^3} \tag{2.41}$$

$$n_L = \frac{N_L}{N_S + N_L} = \frac{\xi}{\xi + \lambda^3(1-\xi)} = \frac{\phi_L/d_L^3}{\phi_S/d_S^3 + \phi_L/d_L^3} \tag{2.42}$$

in which $\phi_S = \frac{V_S}{V_S+V_L+V_{fl}}$ and $\phi_L = \frac{V_L}{V_S+V_L+V_{fl}}$ correspond to the volume fraction of small and large particles, respectively.

Figure 2.28(d) displays the experimental data of Fig.2.28(c) as a function of $\bar{Pe}_{lub}$, for different ξ values. Whatever the value of ξ, η_0 scales as the inverse of $\bar{Pe}_{lub}$. For graphical reasons, the results obtained for others values of ξ are not represented but the behavior is the same. Bidisperse suspensions then clearly exhibit the same physical properties as monodisperse suspensions, providing that an effective diameter has been defined. In our case, Eq.(2.40-2.42) seems to provide a relevant definition for this effective diameter. Still, even after introducing an effective diameter various parallel evolutions are observed depending on the fraction in large particles ξ. This is linked to changes in the packing fraction with ξ and λ. Such a dependence is non trivial. Indeed, when particles of different sizes are mixed together, the small spheres move freely in the interstices between large spheres, leading to an increase of ϕ^*. Since this "filling" depends on experimental conditions, it is impossible to correctly predict a value of ϕ^*. For this reason the dependency of ϕ^* on λ and ξ is usually estimated through

either a correlative approach or by numerical simulations. Numerous relations can then be found in the literature [141, 142, 140, 143, 144]. In the present paper, we chose to use the empirical expression developed by [141] because it leads to results that are consistent with experimental steady profiles of particle concentration. This model is written as :

$$\begin{aligned}\phi^* &= \phi^*_{mono}\left[1+\frac{3}{2}|b|^{3/2}\left(\frac{\phi_L}{\phi}\right)^{3/2}\left(\frac{\phi_S}{\phi}\right)\right] \\ &= \phi^*_{mono}\left[1+\frac{3}{2}|b|^{3/2}\xi^{3/2}\left(1-\xi\right)\right]\end{aligned} \tag{2.43}$$

With $b = (d_S - d_L)/(d_S + d_L)$, ϕ_S and ϕ_L the volume fractions in small and large particles respectively, ϕ^*_{mono} the maximum packing fraction for a monodisperse suspension (equal to 0.70 here (Fig.2.27(b)).

Figure 2.29 displays the evolution of ϕ^* calculated via Eq.(2.43) as a function of ξ. The curve displays a bell shape with a maximum for $\xi = 0.6$ and ϕ^* ranging from 0.70 to 0.81. Such a range of ϕ^* appears reasonable in view of the various values reported in the literature that can reach 0.83 [61]. The ξ value corresponding to the maximal of ϕ^* is the same as that corresponding to the minimum in viscosity η_0. This confirms that the evolution with ξ of the viscosity of the bidisperse suspension is linked to the evolution of the value of the packing fraction. Such a statement is confirmed by the curve displayed in Fig.2.30, where η_0 is plotted as a function of $\bar{Pe}_{lub}/\exp\left(\frac{\gamma\phi/\phi^*}{1-\phi/\phi^*}\right)$, where ϕ^* varies with ξ according to Eq.(2.43) and γ is fixed to 0.84, the value obtained in the monodisperse case. Using such a treatment, all points of Fig.2.28(c) tend to fall onto a master curve with a slope -1, which implies that :

$$\eta_0 = B\bar{Pe}^{-1}_{lub}\exp\left(\frac{\gamma\frac{\phi}{\phi^*(\xi)}}{1-\frac{\phi}{\phi^*(\xi)}}\right) \tag{2.44}$$

With B a constant equal to 0.40 Pa.s.

Still, some scattering remains visible between the various data points. This may tentatively be assigned to the assumption of a constant γ value whatever the value of ξ, whereas in fact, it appears likely that γ varies with ξ. Indeed, γ is defined by $\gamma = \frac{V_f}{\sum_{i=0}^{N_p} v_f}$ where V_f is the total free volume, v_f the average free volume per grain and N_p the total number of grains. When $\gamma = 1$, the beads do not share their free volume with their neighbors whereas when $\gamma = 0$, the beads share their entire free volume. Consequently, when beads of two sizes are mixed together, small beads can fill spaces between large

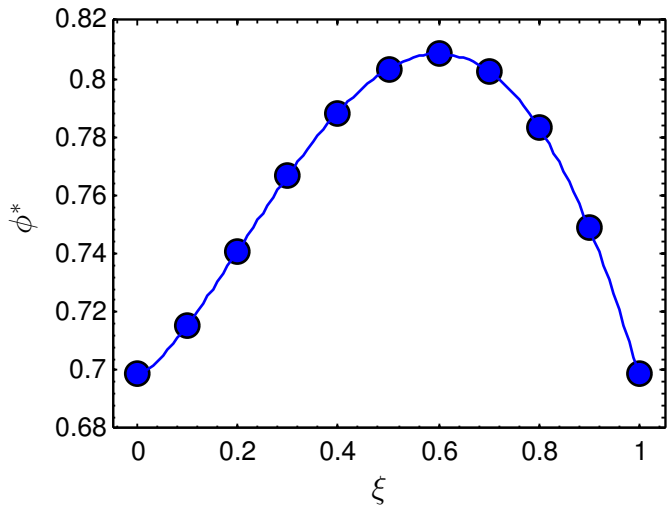


FIGURE 2.29 – Packing fraction (ϕ^*) determined by Shauly's correlation [141] (Eq.(2.43)) as a function of the fraction in large particles (ξ) for a bidisperse suspension with a size ratio $\lambda = d_L/d_S = 5.3$.

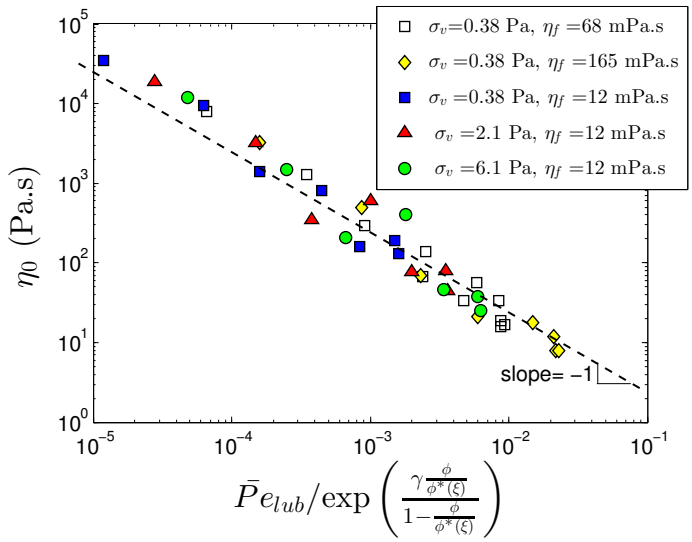


FIGURE 2.30 – Low shear viscosity plateau (η_0) as a function of $\bar{P}e_{lub}/\exp(\frac{\phi/\phi^*}{1-\phi/\phi^*})$, with $\bar{P}e_{lub}$ the lubrication Peclet number based on an effective diameter (Eq.(2.39)), $\phi^* = \phi^*(\xi)$ the packing fraction defined by Eq.(2.43), γ is fixed and equal to 0.84, the value obtained for monodisperse particles, for various values of fluid viscosity (η_f), vibration stress (σ_v) and fraction in large particles (ξ).

beads, which modifies γ. Such a phenomenon is documented in the literature, where γ values lying between 0.5 and 1 have been reported in theoretical studies [133, 134, 136]. However, these values have, to our knowledge, never been verified neither by experimental methods nor numerical simulations. For this reason, in the present case, we chose to determine the value of γ by fitting the experimental data in Fig.2.28(c) by Eq.(2.44). γ becomes a free parameter, ϕ^* is determined by Shauly's correlation (Eq.(2.43)) and B is fixed to 0.40 Pa.s. The value of γ is a unique function of ξ. The result of such a

treatment is plotted in Fig.2.31.

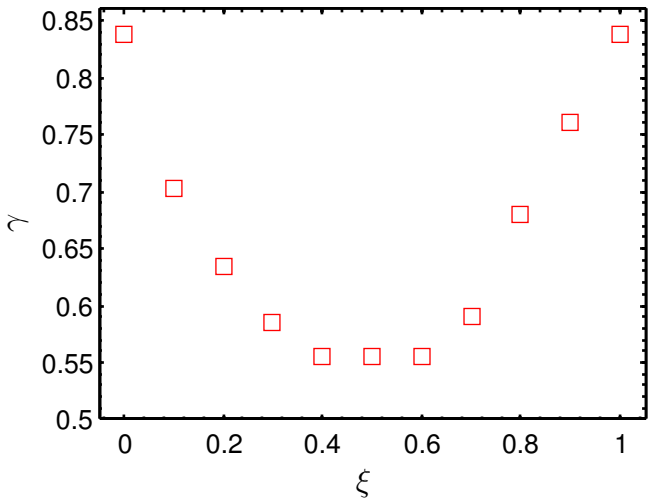


FIGURE 2.31 – Overlap factor (γ) as a function of the fraction in large particles (ξ), for a bidisperse suspension with a size ratio $\lambda = d_L/d_S = 5.3$, obtained by fitting the experimental data in Fig.2.28(c) by Eq.(2.46).

The values thus obtained appear reasonable since they range between 0.55 and 0.84. γ decreases with ξ, reaches a minimum value at $\xi = 0.6$ and increases as ξ tends to 1. Figure 2.32 displays the low shear viscosity η_0 as a function of $\bar{P}e_{lub}/\exp\left(\frac{\gamma\phi/\phi^*}{1-\phi/\phi^*}\right)$, where $\gamma = \gamma(\xi)$ (Fig.2.31) and $\phi^* = \phi^*(\xi)$ (Fig.2.29). The discrepancy between the different values present in Fig.2.30 vanishes, which comforts our assumptions. It appears that neither the maximum packing fraction ϕ^* defined by Eq.(2.43) nor the overlap factor γ depend on vibration energy and fluid viscosity as such dependencies are taken into account through the use of $\bar{P}e_{lub}$. The comparison of Fig.2.28, 2.30 and 2.32 shows that an additional factor must be introduce to account for the polydispersity through $\phi^* = \phi^*(\xi)$ and $\gamma = \gamma(\xi)$. Finally, the linear regression of Fig.2.32 shows that :

$$\eta_0 = B\bar{P}e_{lub}^{-1}\exp\left(\frac{\gamma(\xi)\frac{\phi}{\phi^*(\xi)}}{1-\frac{\phi}{\phi^*(\xi)}}\right) \tag{2.45}$$

$$= B\frac{\mu P_g}{\eta_f(2\pi f)}\bar{d}(\xi)\exp\left(\frac{\gamma(\xi)\frac{\phi}{\phi^*(\xi)}}{1-\frac{\phi}{\phi^*(\xi)}}\right) \tag{2.46}$$

Where $B = 0.40$ Pa.s is a constant dimensional factor independent of the vibration energy and the fluid viscosity.

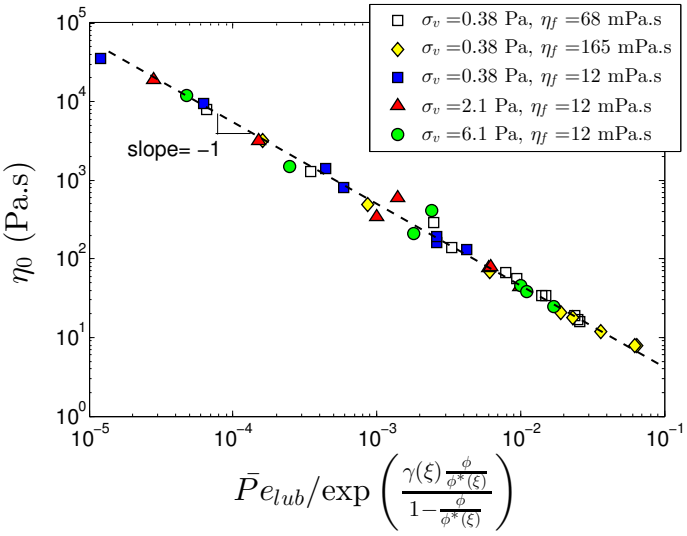


FIGURE 2.32 – Low shear viscosity plateau (η_0) as a function of $\bar{P}e_{lub}/\exp\left(\frac{\phi/\phi^*}{1-\phi/\phi^*}\right)$, with $\bar{P}e_{lub}$ the lubrication Peclet number based on an effective diameter (Eq.(2.39)), $\phi^* = \phi^*(\xi)$ the packing fraction defined by Eq.(2.43), $\gamma = \gamma(\xi)$ the overlap factor (Fig.2.31), for various values of fluid viscosity (η_f), vibration stress (σ_v) and fraction in large particles (ξ).

2.5.5 Conclusion

The viscous behavior of vibrated bidisperse granular suspensions has been described through a free volume model accounting for the fraction in large particles ξ, the viscosity of the suspending fluid η_f, the amplitude A and the frequency f of the vibrations, for a constant size ratio $\lambda = 5.3$ and a fixed value of the total volume fraction $\phi = 0.61$. It has been established as an extension of a previous model describing the rheological behavior of monodisperse granular suspension [90]. The relevance of such an extension is supported by the fact that monodisperse and bidisperse suspensions exhibit similar rheological behaviors (Fig.2.26(a) and (b), Fig.2.28(a) and (b)).

In the low shear regime, where granular dynamics is dominated by the vibrations, monodisperse suspensions have been shown to be entirely controlled by the lubrication Peclet number Pelub, accounting for the effect of vibrations, fluid viscosity, frictional interactions and particles diameter through the relation $\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1} \propto \frac{\mu P_g d(\xi)}{\eta_f A(2\pi f)}$ (Fig.2.26(d)). However, in the case of bidisperse suspensions, the bimodal nature of the samples implies the introduction of the additional parameter ξ into the model since the lubrication Peclet number is, in that case, insufficient to describe the viscous behavior of the samples (Fig.2.28(d)). To account for this additional parameter, we have been led to adopt an effective approach involving the definition of an effective mean diameter $\bar{d} = d_S \frac{\lambda^3(1-\xi)}{\xi+\lambda^3(1-\xi)} + d_L \frac{\xi}{\xi+\lambda^3(1-\xi)}$ leading to the definition of an effective lubrication Peclet number $\bar{P}e_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\mu P_g \bar{d}}$ which was com-

bined to an exponential factor $\exp\left(\frac{\gamma\phi/\phi^*}{1-\phi/\phi^*}\right)$ in order to account for free volume effects, γ being the overlap factor. Finally it has been shown that the low shear viscosity η_0 can be expressed as $\eta_0 = B\frac{\mu P_g}{\eta_f A(2\pi f)}\bar{d}\exp\left(\frac{\gamma\frac{\phi}{\phi^*}}{1-\frac{\phi}{\phi^*}}\right)$ with $\bar{d} = \bar{d}(\xi)$ (Eq.(2.40)), $\phi^* = \phi^*(\xi)$ (Eq.(2.43)) (Fig.2.29), $\gamma = \gamma(\xi)$ (Fig.2.31) and $B = 0.40$ Pa.s, a dimensional constant. This equation describes the viscosity of bidisperse as well as monodisperse vibrated granular suspensions.

Thereafter, in order to complete and improve the model, it would be worthwhile to carry out additional viscosity measurements for different values of the size ratio Î». Furthermore, this study could be extended to multimodal polydisperse granular suspensions.

2.5.6 Appendix

We study the behavior of the viscosity of the bidisperse suspension in the regime $\sigma > \sigma_f$. In that case, η does not depend on σ_v and increases with the fluid viscosity η_f (Fig.2.28(a) and 2.28(b)). Experiments carried out with different viscosities of the suspending fluid show that η is a linear function of η_f.

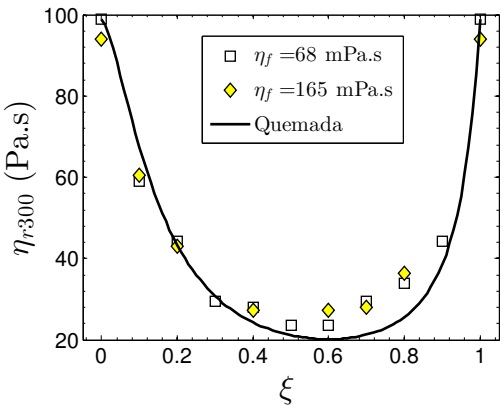


FIGURE 2.33 – Relative high shear viscosity ($\eta_{r300} = \eta/\eta_f$) with η the suspesnion viscosity and η_f the fluid viscosity for $\sigma = 300$ Pa as a function of the fraction in large particles (ξ), for bidisperse particles immersed in a fluid of viscosity $\eta_f = 68$ and 165 mPa.s. The line represents the fit of the experimental data by Quemada's law [71] with ϕ^* detrmined by Shauly's relation [141] (Eq.(2.43) and fig4ra).

Figure 2.33 displays the evolution of the relative viscosity $\eta_{r300} = \eta/\eta_f$ for $\sigma = 300$ Pa as a function of ξ. The evolution is similar to that observed for $\sigma < \sigma_f$ (Fig.2.28(c)) with a significantly lowered viscosity of the bidisperse suspension compared to the monodisperse one. Numerous experimental works [61, 62, 126, 127, 129, 130, 131, 132] and numerical simulations [59, 139, 145, 146, 147, 148, 149] have shown that under shear, laws used to describe the viscosity of monodisperse suspensions such as

Krieger Dougherty relation could be extended to the case of bidisperse suspensions using a packing fraction, ϕ^* that evolves with the fraction in large particles ξ. In the same way, it is reasonable to extend Quemada's law [71], used to describe the viscosity-concentration curve for monodisperse particles (Fig.2 in [90]), to the case of bidisperse particles by applying Shauly's relation [141] (Eq.(2.43) and Fig.2.29) to describe the evolution of ϕ^* with ξ. Figure 2.33 displays the result of such a treatment and reveals a good agreement between experimental data and Quemada's law. The agreement is slightly less satisfactory in the range $\xi = 0.6$-0.8 i.e. in the range of minimal viscosity. This may be due either to some inacurracy in Shauly's relation or in the choice of ϕ^*_{mono} in (Eq.(2.43)). Still, these results show that in the high shear regime, suspension behaves as a homogeneous suspension of hard spheres, whether the particles are monodisperse or bidisperse.

+

Chapitre 3

Étude des propriétés dynamiques à l'échelle du grain

Sommaire

3.1 Introduction 126

3.2 Théorie de la diffusion dynamique de la lumière 128

3.2.1 Diffusion simple de la lumière 128

3.2.2 Diffusion multiple de la lumière 131

3.2.3 Diffusion de la lumière multispeckle 138

3.3 Étude des propriétés dynamiques aux temps longs par MSDWS et par spectroscopie mécanique 142

3.3.1 Abstract 142

3.3.2 Introduction 143

3.3.3 Mechanical spectroscopy 144

3.3.4 Comparison with Diffusing Wave Spectroscopy measurements 150

3.3.5 Conclusion 157

3.4 Étude des propriétés dynamiques aux temps courts par DWS 159

3.4.1 Matériel et méthodes expérimentales 159

3.4.2 Résultats et discussions 164

3.4.3 Différence de comportement entre les temps longs et les temps courts 170

3.4.4 Ouverture : application à la micro-rhéologie 171

3.1 Introduction

Jusqu'à présent, nous nous sommes surtout intéressés au comportement rhéologique des suspensions granulaires vibrées à l'échelle macroscopique. Dans ce chapitre, nous tentons de comprendre la dynamique du système à l'échelle du grain afin de faire le lien avec le comportement macroscopique observé.

Le rhéomètre à poudre, rhéomètre classique couplé à une cellule vibrante, s'est montré particulièrement efficace pour déterminer le comportement rhéologique de suspensions granulaires vibrées. Pour caractériser l'effet des vibrations sur la viscosité de la suspension, il suffit (à priori) de se placer à bas cisaillement. En effet, les courbes d'écoulement réalisées en régime permanent montrent l'existence d'un plateau newtonien η_0 dont la valeur dépend fortement de l'énergie injectée au système via les vibrations. Dans le régime dominé par les forces visqueuses ($Re_p < 1$), la viscosité η_0 est contrôlée par un nombre sans dimension, le nombre de Péclet de lubrification Pe_{lub} défini comme le rapport des forces de lubrification et des forces frictionnelles, tel que $\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1}$. Mais que se passe-t-il à l'échelle du grain ? Peux-t-on relier ce comportement macroscopique rhéologique aux propriétés de diffusion des particules ? De quelle manière les vibrations affectent-t-elles la réorganisation des billes ? Le système se comporte-t-il de la même façon aux temps courts et aux temps longs ?

Pour répondre à ces questions, nous proposons de sonder expérimentalement la dynamique du système sous vibrations à une échelle microscopique. Dans un premier temps, on peut avoir recours une nouvelle fois au rhéomètre à poudre en faisant de la spectroscopie mécanique dans le but d'obtenir les propriétés viscoélastiques du milieu, comme évoqué dans le Chapitre 2. L'analyse des spectres mécaniques fournit notamment des informations sur le temps de relaxation le plus grand en lien avec le comportement sous écoulement. Néanmoins la mesure reste macroscopique et l'effet du cisaillement, si petit soit-il, reste présent. Nous proposons donc une autre méthode expérimentale, la diffusion dynamique de la lumière, qui s'est d'ores et déjà montrée pertinente pour étudier la dynamique de milieux granulaires mouillés ou non, en présence et en l'absence de vibrations [85, 87, 150, 151, 152]. Cette méthode fournit une mesure microscopique de la dynamique du système, uniquement sous vibrations. Le principe de base consiste à éclairer l'échantillon avec la lumière cohérente d'un laser. La lumière diffusée forme une figure d'interférences de speckles (Fig.3.1) qui fluctue en intensité sous l'effet du mouvement des particules. L'interprétation de ces fluctuations permet d'extraire des informations sur le comportement dynamique moyen des échantillons.

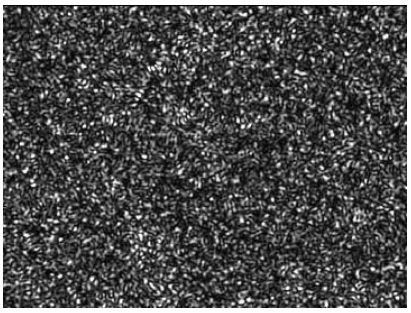


FIGURE 3.1 – Figure d'interférences de speckles.

Les techniques de diffusion dynamique de la lumière peuvent être classées en deux catégories : traditionnelle et multispeckle. Dans la première, l'intensité de la lumière diffusée est mesurée en un point de la figure d'interférences. En diffusion simple (*Dynamic Light Scattering* ou DLS en anglais), le photon est diffusé une seule fois par une seule particule alors qu'en régime multiple (*Dynamic Wave Spectroscopy* ou DWS en anglais), le photon réalise une vraie marche aléatoire dans le milieu en étant diffusé plusieurs fois par plusieurs particules. La DWS permet de sonder la dynamique du système sur des temps courts, typiquement sur des échelles de temps comprises entre 10^{-7}-10^{-1} s. Pour des temps plus longs, on utilisera la deuxième catégorie d'expériences, la diffusion de lumière mutlispeckle (Multispeckle Diffusing Wave Spectroscopy ou MSDWS). Cette technique assez récente utilise une caméra CCD qui permet de mesurer l'intensité d'un nombre important de speckles simultanément et indépendamment. La dynamique du système aux temps longs peut ainsi être déterminée sur des échelles de temps supérieures à 0.1 s. Par contre, on ne peut pas avoir accès à la dynamique rapide des systèmes.

Ce chapitre se déroule en trois parties. La première, consacrée à la théorie de la diffusion de lumière, est nécessaire pour introduire les bases de cette technique. On s'intéressera ensuite à la dynamique d'une suspension granulaire soumise à des vibrations aux temps longs, par spectroscopie mécanique et par diffusion de lumière multispeckle (MSDWS). Le but est de pouvoir faire le lien entre les mesures macroscopiques de viscosité obtenues dans le second chapitre avec les propriétés du milieu à l'échelle des grains. Dans la troisième partie, il nous a semblé naturel d'étendre notre étude à l'observation de la dynamique des particules vers les temps courts, en utilisant la diffusion multiple de lumière traditionnelle (DWS). Nous verrons en guise d'ouverture que cette technique permet de remonter aux propriétés viscoélastiques du système à ces temps courts, inaccessibles par spectroscopie mécanique.

3.2 Théorie de la diffusion dynamique de la lumière

Cette partie est destinée à décrire les techniques de diffusion de lumière en essayant d'extraire les concepts essentiels. L'idée est de comprendre les mécanismes nécessaires pour permettent de définir les fonctions d'auto corrélation qui seront utilisées par la suite. Les principes présentés ici s'appuient en grande partie sur des thèses, livres, articles détaillés [153, 154, 155].

3.2.1 Diffusion simple de la lumière

Dans cette partie, il s'agit de présenter succinctement les bases de la diffusion simple de lumière (DLS). Considérons un cas élémentaire, à savoir une suspension de particules sphériques et monodisperses soumises au mouvement brownien. Le montage classique consiste à éclairer l'échantillon avec un laser (de longueur d'onde λ) (Fig.3.2(a)). Les particules sont en concentration suffisamment diluée pour pouvoir se placer dans l'hypothèse que le photon est diffusé une seule fois par une particule. Le photon voit alors sa phase modifiée lors de cette interaction. Le détecteur, un photomultiplicateur par exemple, analyse l'intensité et les fluctuations temporelles du rayon lumineux diffusé. Comment relier ces fluctuations à la dynamique des particules ?

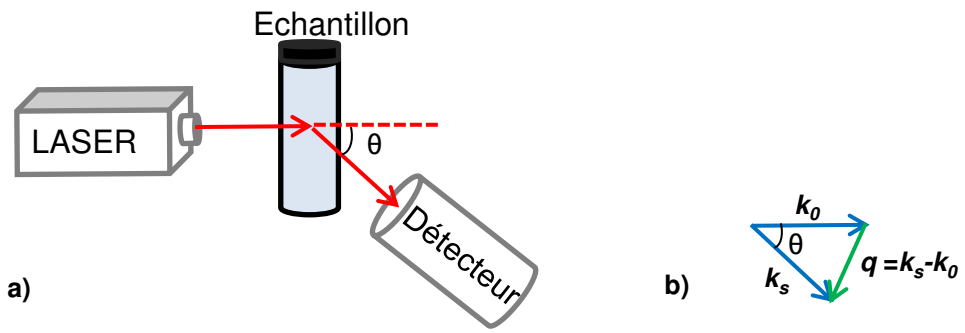


FIGURE 3.2 – a) Schéma simplifié d'une expérience de diffusion de lumière, simple ou multiple, en rétrodiffusion. b) Vecteurs de propagation du faisceau incident ($\mathbf{k_0}$) et du faisceau diffusé ($\mathbf{k_s}$), vecteur diffusion ($\mathbf{q}$).

Le faisceau laser incident est une onde électromagnétique plane monochromatique polarisée linéairement dont l'amplitude du champ électrique $E_I(\mathbf{r}, t)$ s'écrit :

$$E_I(\mathbf{r}, t) = E_0 \exp\left[\mathrm{i}(\mathbf{k_0}.\mathbf{r} - \omega t)\right] \tag{3.1}$$

Avec E_0 l'amplitude du champ électrique polarisé perpendiculairement au plan de diffusion qui contient

la direction de propagation du faisceau incident (voir [153] pour plus de détails), $\mathbf{k_0}$ le vecteur de propagation du faisceau incident d'amplitude $k_0 = 2\pi/\lambda$, $\mathbf{r}$ le vecteur position par rapport à une origine arbitraire, ω la fréquence angulaire et t le temps.

Le rayonnement incident est ensuite diffusé par les N_p particules du volume d'échantillon diffusant (chaque photon est diffusé une seule fois par une seule particule), avec un vecteur d'onde $\mathbf{k_s}$. L'amplitude du champ électrique total diffusé sur le détecteur $E(\mathbf{q}, t)$, faisant un angle θ par rapport au faisceau incident, est alors égal à la somme des champs électriques provenant des N_p particules individuelles, soit [16] :

$$E(\mathbf{q}, t) = \sum_{i=1}^{N_p} E_0 \exp\left(-\mathrm{i}\mathbf{q}.\mathbf{r_i}(t)\right) \tag{3.2}$$

Avec $\mathbf{r_i}(t)$ le vecteur position de la $i$ème particule, $\mathbf{q}$ le vecteur de diffusion tel que (Fig.3.2(b)) :

$$\mathbf{q} = \mathbf{k_s} - \mathbf{k_0} \qquad et \qquad |\mathbf{q}| = q = \frac{4n\pi}{\lambda} \sin\frac{\theta}{2} \tag{3.3}$$

Avec n l'indice optique du solvant.

Le terme $\mathbf{q}.\mathbf{r_i}(t)$, appelé « la phase », est dû au phénomène de diffusion et dépend de la position des particules diffusantes. Quand ces mêmes particules bougent, sous l'effet du mouvement brownien par exemple, la phase du champ électrique diffusé de chaque particule change également. Par conséquent,le champ diffusé total $E(\mathbf{q}, t)$ à l'instant t est différent de celui diffusé à l'instant initial $E(\mathbf{q}, 0)$. Pour de faibles valeurs de t, la phase est peu modifiée, $E(\mathbf{q}, 0)$ et $E(\mathbf{q}, t)$ sont fortement corrélés. Pour des temps t plus importants, la phase peut changer d'environ 2π, les champs sont complètement décorrélés et la particule s'est déplacée d'une distance environ égale à $2\pi/q$. La diffusion simple de lumière permet donc de sonder la dynamique d'un système sur des échelles spatiales de l'ordre de $1/q$ allant ainsi de quelques micromètres à la centaine de micromètres.

Expérimentalement, il est plus facile de déterminer l'intensité diffusée $I(\mathbf{q}, t)$. Cette dernière est reliée au champ électrique par $I(\mathbf{q}, t) \propto |E(\mathbf{q}, t)|^2$. Sous l'effet du mouvement des grains, l'intensité diffusée présentera donc des fluctuations temporelles caractérisées par la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité diffusée $g_2(\mathbf{q}, t)$ définie par :

$$g_2(\mathbf{q}, t) = \frac{\langle I(\mathbf{q}, 0) I(\mathbf{q}, t)\rangle}{\langle I(\mathbf{q})\rangle^2} \tag{3.4}$$

16. L'expression de l'amplitude du champ électrique total $E(\mathbf{q}, t)$ provient des équations de Maxwell appliquées à une onde électromagnétique se propageant dans le milieu. Pour plus de détails, le lecteur pourra se référer à la thèse de A. Duri [153].

Où $I(\mathbf{q},0)$ et $I(\mathbf{q},t)$ sont les intensités du rayon diffusé respectivement au temps initial et à un instant t, $\langle I(\mathbf{q})\rangle$ représente l'intensité moyenne diffusée, $\langle\ \rangle$ indique une moyenne temporelle.

La fonction $g_2(\mathbf{q},t)$ présente les limites suivantes : $\lim_{t\to 0} g_2(\mathbf{q},t) = \left\langle I_s^2(\mathbf{q})\right\rangle / \left\langle I_s(\mathbf{q})\right\rangle^2$ et $\lim_{t\to\infty} g_2(\mathbf{q},t) = 1$.

Expérimentalement, le détecteur donne des mesures de $g_2(\mathbf{q},t)$. Néanmoins, pour obtenir des informations sur les propriétés physiques du système, nous avons besoin de connaitre la fonction d'autocorrélation normalisée du champ diffusée $g_1(\mathbf{q},t)$. On la détermine à partir de $g_2(\mathbf{q},t)$ en utilisant la relation de Siegert :

$$g_2(\mathbf{q},t) = 1 + \beta|g_1(\mathbf{q},t)|^2 \tag{3.5}$$

Où β représente un facteur de cohérence spatiale compris entre 0 et 1.

Nous allons voir que la fonction $g_1(\mathbf{q},t)$ permet de déterminer par exemple les variations de déplacement quadratique moyen des particules au cours du temps. Outre la relation de Siegert, cette fonction est définie par :

$$g_1(\mathbf{q},t) = \frac{\langle E(\mathbf{q},0)E^*(\mathbf{q},t)\rangle}{\langle I_s(\mathbf{q})\rangle} \tag{3.6}$$

Avec $E(\mathbf{q},0)$, le champ diffusé à l'instant initial, $E^*(\mathbf{q},t)$ le complexe conjugué du champ diffusé à l'instant t.

Les limites de la fonction $g_1(\mathbf{q},t)$ sont : $\lim_{t\to 0} g_1(q,t) = \langle I_s(\mathbf{q})\rangle / \langle I_s(\mathbf{q})\rangle = 1$ et $\lim_{t\to\infty} g_2(\mathbf{q},t) = 0$.

En injectant l'Eq.(3.2) dans l'Eq.(3.6) (on passera les détails de calculs), on obtient $g_1(\mathbf{q},t) = \langle\exp(\mathbf{iq}.\Delta\mathbf{r}(t))\rangle$ avec $\Delta\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}(t) - \mathbf{r}(0)$ le déplacement de la particule pendant le temps t. Dans le cas d'une suspension de particules browniennes, $\Delta\mathbf{r}(t)$ est une variable aléatoire gaussienne, d'où :

$$g_1(\mathbf{q},t) = \exp(-q^2\left\langle\Delta r^2(t)\right\rangle/6) \tag{3.7}$$

Avec $\left\langle\Delta r^2(t)\right\rangle$ le déplacement quadratique moyen des particules.

Dans le cas d'un déplacement purement diffusif, le déplacement quadratique moyen des particules est relié au coefficient de diffusion D par $\left\langle\Delta r^2(t)\right\rangle = 6Dt$ avec $D = \frac{k_BT}{6\pi\eta_f R}$ (relation de Stokes Einstein), k_B la constante de Boltzmann, T la température, η_f la viscosité du fluide interstitiel, R le rayon des particules. Il en vient une nouvelle expression de $g_1(\mathbf{q},t)$:

$$g_1(\mathbf{q},t) = \exp(-q^2Dt) \tag{3.8}$$

La fonction d'autocorrélation décroit de façon exponentielle avec un temps caractéristique $\tau_c = 1/Dq^2$.

Expérimentalement, nous avons accès aux mesures de $g_2(\mathbf{q}, t)$. La fonction $g_1(\mathbf{q}, t)$ est obtenue via la relation de Siegert (Eq.(3.5)) et le déplacement quadratique moyen $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ par inversion de l'Eq.(3.7). Grâce à cette technique, nous pouvons également remonter à la taille des particules R en ajustant la courbe $g_1(\mathbf{q}, t)$ en fonction du temps par l'Eq.(3.8).

N'oublions pas que la DLS est restreinte aux milieux très dilués et/ou peu diffusants, où le photon est diffusé une seule fois par une particule avant d'être détecté. Lorsque la lumière est diffusée à plusieurs reprises avant d'être détectée, l'interprétation des fluctuations d'intensité en termes de dynamique du système devient plus complexe. Néanmoins, dans le cas d'un nombre important d'évènements diffusifs, cette interprétation est faisable et constitue l'enjeu de la diffusion multiple de lumière.

3.2.2 Diffusion multiple de la lumière

La technique de diffusion multiple de lumière (Diffusing Wave Spectroscopy ou DWS) est une méthode largement utilisée par la communauté scientifique pour étudier la dynamique de milieux turbides voire opaques comme par exemple des gels colloïdaux ou encore des milieux granulaires denses. Le principe est identique à la diffusion simple. L'échantillon est éclairé par un laser dont le rayonnement incident va être diffusé dans l'échantillon puis collecté par un détecteur (Fig.3.3(a)). Par contre, les photons ne sont plus diffusés une seule fois par les particules mais subissent plusieurs évènements diffusifs lorsqu'il traverse le milieu. La lumière diffusée peut alors être détectée sur le même côté que le laser incident (rétrodiffusion) ou de l'autre côté de l'échantillon (transmission). Les fonctions d'autocorrélation sont différentes suivant la configuration adoptée.

Figure d'interférences de speckles

Lorsqu'on éclaire un milieu diffusant par une lumière cohérente comme le laser, les rayons diffusés par l'échantillon se superposent et forment une figure d'interférences avec des tâches plus ou moins lumineuses appelées « speckles » (Fig.3.3(b)). Il suffit par exemple d'observer en réflexion la tâche lumineuse obtenue sur un écran à peine rugueux ou en transmission la lumière issue d'un verre dépoli. Observée sur le détecteur, cette figure d'interférences provient d'une répartition aléatoire de l'intensité diffusée par les particules individuelles. Certaines ondes lumineuses interfèrent de manière constructive pour former un speckle d'intensité élevée et d'autres ondes sont au contraire destructives donnant lieu

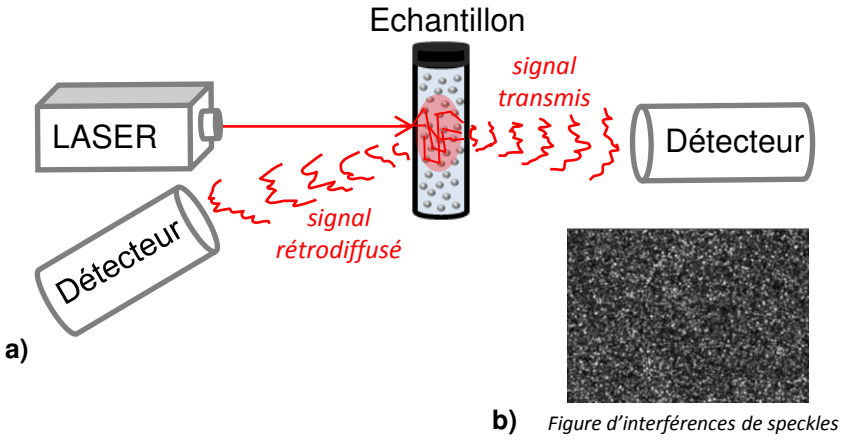


FIGURE 3.3 – a) Principe de la diffusion multiple de lumière (*Dynamic Wave Spectroscopy* en anglais ou DWS). b) Figure d'interférences de speckles.

à une faible intensité. Sans aucun mouvement de la part des particules constituant l'échantillon, la figure de speckles n'évolue pas. Au contraire, le mouvement des particules modifie le trajet des chemins optiques créant ainsi des fluctuations d'intensité de la figure de speckles. La présence de ces variations permettent de remonter à la dynamique du système. En diffusion multiple de lumière, le détecteur (généralement un photomultiplicateur) mesure l'intensité d'un seul speckle.

La marche aléatoire du photon diffusif

Lors de sa traversée dans un milieu fortement diffusif, le photon subit un grand nombre de collisions avec les particules. Son trajet peut s'apparenter à une véritable marche aléatoire dans le milieu diffusant, ce qui nous autorise à utiliser des approches statistiques pour décrire les propriétés dynamiques du milieu. Pour caractériser le chemin emprunté par un photon dans le milieu, on définit trois longueurs (Fig.3.4) :

- le libre parcours moyen l, défini comme la distance entre deux évènements diffusifs
- le libre parcours moyen de transport l^*, qui représente la longueur nécessaire pour que la direction de la lumière soit aléatoire
- la largeur de la cuve L

Les deux quantités sont reliées entre elles par la relation :

$$l^* = \frac{l}{\langle 1 - cos(\theta) \rangle} \tag{3.9}$$

Où θ est l'angle de diffusion, angle que fait chaque photon après un nouvel évènement de diffusion

(Fig.3.4), et $\langle\ \rangle$ indique la moyenne d'ensemble sur un grand nombre de diffusions.

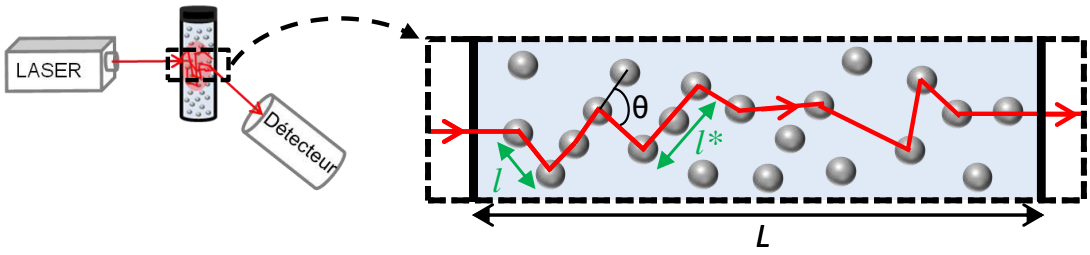


FIGURE 3.4 – Trajet d'un photon dans un échantillon turbide de longueur L. l représente le libre parcours moyen et l^* le libre parcours moyen de transport.

Pour qu'il y ait marche aléatoire, le photon doit subir quelques évènements de diffusion qui redistribuent la direction initiale de propagation du faisceau lumineux. Plus précisément, le chemin parcouru s par le photon entre l'entrée et la sortie de l'échantillon doit être grand devant l^*. Que vaut s ? Le chemin parcouru par le photon est une marche au hasard de pas l. Le nombre de pas est d'environ $(L/l^*)^2$, chaque pas contenant l^*/l évènements de diffusion. On évalue donc le nombre de collisions entre la lumière et les particules sur un chemin comme étant égal à $N_c = (L/l^*)^2(l^*/l)$. On en déduit l'expression de la longueur du chemin $s = N_c.l = L^2/l^*$. La condition nécessaire pour que la propagation de la lumière dans le milieu soit diffusive est donnée par $L >> l^*$.

Le libre parcours moyen l et le libre parcours moyen de transport l^* peuvent être déterminés expérimentalement en mesurant le coefficient de transmission T, égal au rapport de l'intensité transmise I_t et de l'intensité incidente I_0. En pratique, on mesure l'intensité transmise I_t de l'échantillon dont on veut connaitre l^* et celle d'un échantillon de référence I_{tref} dont la longueur l^*_{ref} est connue. Le rapport des deux intensités nous donne directement la valeur de l^* de notre échantillon, puisqu'on a $\frac{I_t}{I_{tref}} = \frac{l^*}{l^*_{ref}} \frac{1+\frac{4}{3}\frac{l^*_{ref}}{L}}{1+\frac{4}{3}\frac{l^*}{L}}$ [156].

Comme tout phénomène de diffusion, il est possible d'associer un coefficient de diffusion des photons à la propagation de la lumière dans le milieu, soit $D_l = cl^*/3$ avec c la célérité de la lumière dans le milieu. Le transport de la lumière dans l'échantillon est alors régi par une équation de diffusion du type [154] :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = D_l \nabla^2 U \tag{3.10}$$

Avec U la densité de photons par unité de volume.

Champ diffusé total $E(t)$

En diffusion simple de lumière, lorsque le photon est diffusé une seule fois par une seule particule, le champ électrique total $E(\mathbf{q}, t)$ collecté par le détecteur à un instant t est égal à la somme des champs électriques issus des particules individuelles (Eq.(3.2)). En diffusion multiple de lumière, le photon étant diffusé plusieurs fois par plusieurs particules, une double somme est requise, une sur les particules et une autre sur les chemins.

Exprimons tout d'abord le champ électrique total $E(t)$. L'intensité mesurée en un speckle provient de l'interférence de différents chemins optiques p empruntés par les photons. Le champ total détecté $E(t)$ à un instant t est donc égal à la somme de tous les champs électriques en provenance de tous ces chemins optiques, tel que :

$$E(t) = \sum_p E_p \exp[\mathrm{i}\phi_p(t)] \tag{3.11}$$

Avec $\sum_p$ la somme sur tous les chemins, E_p l'amplitude du champ sur le chemin p et ϕ_p la phase du photon entre le laser et le détecteur.

Contrairement à son homologue de diffusion simple, l'amplitude E_p n'est pas simplement déterminée par l'intensité du laser. Elle dépend également du nombre d'évènements de diffusion.

Que vaut $\phi_p(t)$? C'est là qu'intervient la somme sur les particules. Au cours de sa traversée dans l'échantillon, le photon subit N évènements de diffusion sur un chemin de longueur $s(t)$ définie par (Fig.3.5) :

$$s(t) = \sum_{i=0}^{N} |\mathbf{r_{i+1}}(t) - \mathbf{r_i}(t)| = \sum_{i=0}^{N} \left(\frac{\mathbf{k_i}(t)}{k_i(t)}\right) (\mathbf{r_{i+1}}(t) - \mathbf{r_i}(t)) \tag{3.12}$$

Où $\sum_{i=0}^{N}$ est la somme sur les particules, $\mathbf{k_i}(t)$ est le vecteur d'onde après le $i$ème évènement diffusif d'amplitude $k_i(t)$, $\mathbf{r_i}(t)$ la position de la particule diffusante i à l'instant t, $\mathbf{r_0}$ la position de la source laser et $\mathbf{r_{N+1}}$ la position du détecteur.

Au cours de ses N évènements de diffusion, le photon accumule de la phase $(\mathbf{k_i(t)}.(\mathbf{r_{i+1}} - \mathbf{r_i}))$. La phase totale entre la source et le détecteur $\phi(t)$ pour un chemin est une superposition de toutes les phases accumulées par le photon. La diffusion de la lumière étant quasi élastique, tous les vecteurs d'onde ont la même amplitude, soit $k_i = k_0$. On obtient alors :

$$\phi(t) = k_0 s(t) = \sum_{i=0}^{N} \mathbf{k_i(t)}(\mathbf{r_{i+1}}(t) - \mathbf{r_i}(t)) \tag{3.13}$$

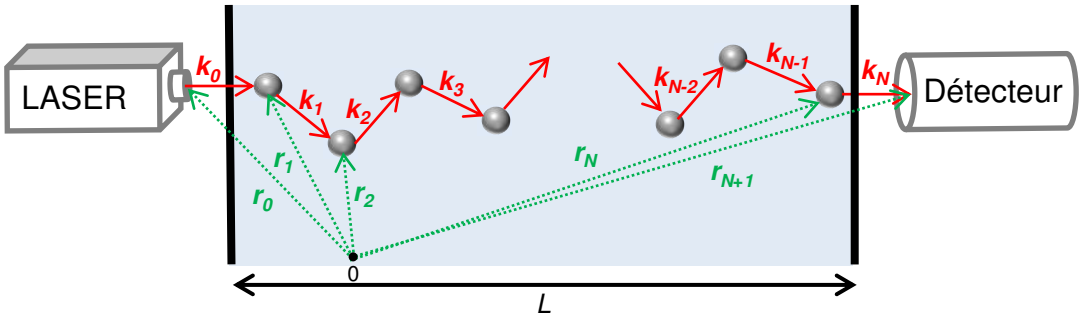


FIGURE 3.5 – Chemin d'un photon dans un échantillon en diffusion multiple. $\mathbf{k_i}$ est le vecteur d'onde après le $i$ème évènement de diffusion et $\mathbf{r_i}$ le vecteur position de la $i$ème particule, avec $0 \leq i \leq N$.

Fonctions d'autocorrélation

Comme énoncé précédemment, le détecteur mesure l'intensité du speckle au cours du temps. Expérimentalement, on a donc directement accès aux fluctuations d'intensité qui peuvent être analysées par la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité $g_2(t)$ définie par :

$$g_2(t) = \frac{\langle I(0)I(t)\rangle}{\langle I\rangle^2} \tag{3.14}$$

Avec $I(0)$ et $I(t)$ les intensités respectivement à l'instant initial et à un instant t, $\langle I\rangle$ l'intensité moyenne diffusée, $\langle\ \rangle$ la moyenne temporelle. Les limites de cette fonction sont : $\lim_{t\to 0} g_2(t) = 2$ et $\lim_{t\to\infty} g_2(t) = 1$.

A partir des valeurs de $g_2(t)$, il est possible de connaitre la fonction d'autocorrélation normalisée du champ électrique $g_1(t)$ grâce à la relation de Siegert (Eq.(3.5)). C'est cette fonction $g_1(t)$ qui nous intéresse car on peut la relier aux propriétés physiques du système étudié. En tenant en compte l'expression du champ électrique (Eq.(3.11)), $g_1(t)$ s'écrit :

$$g_1(t) = \frac{\langle E(0)E^*(t)\rangle}{\langle |E|^2\rangle} \tag{3.15}$$

$$= \frac{1}{\langle I\rangle}\left\langle \left(\sum_p E_p \exp(\mathrm{i}\phi_p(0))\right)\left(\sum_{p'} E_{p'}\exp(-\mathrm{i}\phi_{p'}(t))\right)\right\rangle \tag{3.16}$$

Avec $E(0)$le champ diffusé à l'instant initial, $E^*(t)$ le complexe du champ diffusé $E(t)$ à l'instant t, $\langle I\rangle = \left\langle |E_p|^2\right\rangle$ l'intensité moyenne totale diffusée au détecteur.

En supposant que les différents chemins ne sont pas corrélés, ce qui est vrai pour des particules

indépendantes, les termes $p \neq p'$ sont nuls. L'expression de $g_1(t)$ est alors donnée par :

$$g_1(t) = \left\langle \sum_p \frac{|E_p|^2}{\langle I \rangle} \exp[\mathrm{i}(\phi_p(0) - \phi_p(t))] \right\rangle = \sum_p \frac{\langle I_p \rangle}{\langle I \rangle} \langle \exp(-\mathrm{i}\Delta\phi_p(t)) \rangle \tag{3.17}$$

Avec $\langle I_p \rangle = \left\langle |E_p|^2 \right\rangle$ l'intensité moyenne du chemin p, $\Delta\phi_p(t) = \phi_p(t) - \phi_p(0)$ le décalage de phase.

Le déplacement des particules, autrement dit une modification de leur vecteur position ($\mathbf{r_i}(t)$), provoque une modification de la phase totale $\phi_p(t)$ et par conséquent de la fonction $g_1(t)$ au cours du temps. Le décalage de phase $\Delta\phi_p(t)$ est donc la conséquence d'un changement de dynamique du système et doit être exprimé en fonction du déplacement quadratique moyen $\left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle$. Cette relation est obtenue en faisant la moyenne sur toutes les particules. En supposant que les chemins sont assez longs, i.e. $N >> 1$, le décalage de phase peut s'écrire (les détails de calcul se trouvent en [154]) :

$$\left\langle \Delta\phi_p^2(t) \right\rangle = \frac{2}{3} k_0^2 \left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle \frac{s}{l^*} \tag{3.18}$$

Avec $\left\langle \Delta\phi_p^2(t) \right\rangle$ le décalage quadratique moyen de la phase, $\left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle$ le déplacement quadratique moyen des particules, k_0 l'amplitude du vecteur d'onde, s la longueur du chemin, l^* le libre parcours moyen de transport.

Étant donné que le décalage de phase dépend de la longueur des chemins s, on peut réécrire la fonction d'autocorrélation $g_1(t)$ comme une somme sur s. Ceci implique de remplacer la fraction d'intensité diffusée $\langle I_p \rangle / \langle I \rangle$ par la fraction de l'intensité diffusée sur une longueur s notée $P(s)$, ce qui nous donne :

$$g_1(t) = \sum_s P(s) \exp\left(-\frac{1}{3} k_0^2 \left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle \frac{s}{l^*} \right) \tag{3.19}$$

Il reste encore à déterminer la fonction de distribution de longueur de chemins $P(s)$, qui dépend de la configuration de l'expérience de diffusion, réalisée en rétrodiffusion ou en transmission (Fig.3.3(a)). En rétrodiffusion, la lumière diffusée est détectée sur le même côté que le laser incident. La distribution des chemins est alors assez large, car le détecteur capte à la fois des photons qui ont effectué des chemins assez courts et des photons qui ont parcouru des chemins assez longs. En transmission, l'intensité du rayon diffusé est capté de l'autre côté de l'échantillon. Dans ce cas là, la distribution des chemins est plus étroite puisque le détecteur ne capte que les photons ayant parcouru une distance supérieure ou égale à l'épaisseur de l'échantillon.

Les expressions des fonctions d'autocorrélation se trouvent facilement dans la littérature, notam-

ment dans l'article de Weitz et Pine [154], qui ont résolu l'équation de transport de la lumière pour différentes géométries. Dans le cas d'une configuration en rétrodiffusion, configuration utilisée par la suite, la fonction d'autocorrélation normalisée du champ électrique s'exprime de la façon suivante :

$$g_1(t) = \frac{\sinh\left[\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\left(\frac{L}{l^*} - \frac{z_0}{l^*}\right)\right] + \frac{2}{3}\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\cosh\left[\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\left(\frac{L}{l^*} - \frac{z_0}{l^*}\right)\right]}{\left(1 + \frac{8t}{3\tau}\right)\sinh\left[\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\left(\frac{L}{l^*} - \frac{z_0}{l^*}\right)\right] + \frac{4}{3}\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\cosh\left[\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\left(\frac{L}{l^*} - \frac{z_0}{l^*}\right)\right]} \tag{3.20}$$

Avec $\frac{6t}{\tau} = k_0^2 \left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle$, t le temps, τ le temps caractéristique de la dynamique des diffuseurs, $z_0 = \gamma l^*$ la distance à partir de laquelle la lumière incidente devient aléatoire (Fig.3.6). Le facteur d'échelle γ permet de prendre en compte la distance à partir de laquelle la lumière pénètre dans l'échantillon avant d'être diffusée. Il est fonction de la géométrie utilisée. Nous verrons dans la prochaine partie comment l'évaluer.

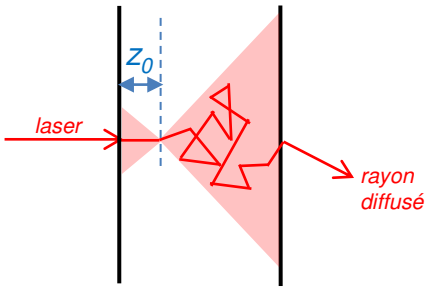


FIGURE 3.6 – Définition de la longueur z_0. C'est la distance à partir de laquelle la lumière incidente devient aléatoire.

Pour des échantillons de grande épaisseur ($L >> l$), la fonction $g_1(t)$ se simplifie pour donner :

$$g_1(t) = \frac{\exp\left(-\frac{z_0}{l^*}\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\right)}{\frac{2}{3}\sqrt{\frac{6t}{\tau}}} \tag{3.21}$$

Plusieurs travaux de la littérature [154, 157] ont montré qu'une forme encore plus simplifiée de $g_1(t)$ ajustait correctement les données expérimentales. Elle se présente sous la forme :

$$g_1(t) = \exp\left(-\gamma\sqrt{\frac{6t}{\tau}}\right) = \exp\left(-\gamma\sqrt{k_0^2 \left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle}\right) \tag{3.22}$$

La connaissance de $g_1(t)$ permet donc de déterminer le déplacement quadratique moyen $\left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle$ au cours du temps (Eq.(3.20)) en inversant point par point la fonction. La DWS permet donc de remonter à la dynamique moyenne des particules. Par rapport à la DLS, on constate que la fonction

d'autocorrélation $g_1(t)$ ne dépend pas du vecteur d'onde $\mathbf{q}$. Il n'est donc pas possible d'extraire des informations sur les particules individuelles. En revanche, la DWS est très sensible à leur déplacement. Rappelons que la technique est focalisée sur les fluctuations d'intensité d'un speckle. La durée de vie d'un speckle, déterminée par la durée typique de la fluctuation d'intensité (décorrélation totale), correspond à un changement de phase d'environ π du rayon diffusé lié à un changement de l'ordre de la longueur d'onde λ du chemin des photons. Étant donné que le faisceau subit de nombreuses diffusions sur un chemin, il suffit que chaque particule placée sur ce chemin se déplace d'une fraction de λ pour introduire ce changement de phase total. La DWS peut ainsi mesurer des déplacements très inférieurs à λ allant jusqu'à la fraction de nanomètres, ce qui fait un atout indéniable de cette technique.

On fera attention au cours de nos expériences aux éventuels phénomènes d'absorption de la lumière par les particules ou le fluide. Ils peuvent altérer la distribution des longueurs de chemin $P(s)$, en particulier les chemins longs. Les effets de l'absorption sont surtout visibles aux temps courts.

3.2.3 Diffusion de la lumière multispeckle

En diffusion de lumière (simple ou multiple), le détecteur utilisé pour collecter la lumière diffusée est généralement un photomultiplicateur, de telle façon à ne mesurer que l'intensité d'un speckle. Ceci permet d'optimiser l'amplitude du signal qui va fluctuer au cours du temps sous l'effet du mouvement des particules. Le succès de cette technique tient à deux points importants. Le premier nécessite que le système soit stationnaire au cours de l'expérience. Généralement, le signal est récupéré par un corrélateur qui calcule la fonction d'autocorrélation. Pour se faire, l'appareil réalise une moyenne temporelle au fur et a mesure qu'il accumule des mesures afin d'obtenir des statistiques acceptables. Cependant, cette moyenne nécessite un temps de mesure important. Une précision d'1% sur la fonction d'autocorrélation requiert de faire des mesures d'intensité sur des échelles de temps d'environ 10^4 fois le temps de vie d'un speckle. Par exemple, si le temps caractéristique du système est de l'ordre de plusieurs dizaines de secondes, l'acquisition de la fonction d'autocorrélation prendra des heures voire des jours. Ceci implique que la dynamique des particules ne change pas de façon significative pendant ce temps de mesure. Il est donc impossible de suivre des dynamiques lentes. Les échelles de temps raisonnablement accessibles se situent entre 10^{-7} et 10^{-2} s. Second point, le système doit être ergodique. Dans le cadre de la diffusion de lumière, un système est dit ergodique si les fluctuations d'intensité d'un speckle sont représentatives de celles de tous les speckles. Autrement dit, les moyennes temporelles effectuées sur une réalisation particulière pendant un temps suffisamment long doivent coïncider avec les moyennes

d'ensemble correspondantes. En conclusion, les techniques classiques présentées ici ne sont pas adaptées aux systèmes non ergodiques et/ou non stationnaires.

Une alternative à cette technique classique existe afin de résoudre ces problèmes de non ergodicité et afin de permettre également d'atteindre des dynamiques lentes dans un temps de mesure raisonnable. Il s'agit de la difusion multiplie multi speckle (Multispeckle Diffusing Wave Spectroscopy ou MSDWS) [89, 158, 159]. Le photomultiplicateur et le corrélateur sont remplacés par une caméra CCD contrôlée par un ordinateur. La matrice de pixels de la caméra CCD permet de mesurer l'intensité d'un grand nombre de speckles simultanément et indépendamment. Capturer une image formée de N speckles avec une caméra CCD revient à échantillonner N systèmes indépendants. Le problème d'ergodicité ne se pose donc pas. Si N est assez grand (typiquement $\gtrsim 10^4$), il est possible d'obtenir une moyenne d'ensemble sur tous les pixels sans avoir recours à une moyenne temporelle. Il n'est donc pas nécessaire d'avoir un système stationnaire. La MSDWS permet donc de sonder la dynamique aux temps longs d'un système. L'analyse des fluctuations d'intensité se fait par une fonction d'autocorrélation basée sur les moyennes d'ensemble de l'intensité, soit [159] :

$$g_2(t_0, t) = \frac{\langle I(t_0) I(t_0 + t) \rangle_{speck}}{\langle I(t_0) \rangle_{speck} \langle I(t_0 + t) \rangle_{speck}} \tag{3.23}$$

Avec t_0 le temps initial où l'intensité de référence est mesurée, t le temps de retard ($t > t_0$), $\langle\ \rangle_{speck}$ la moyenne sur l'ensemble des pixels choisis (et non sur le temps comme en DWS).

On peut noter que la fonction $g_2(t_0, t)$ est une fonction à deux temps. En effet, la moyenne spatiale n'élimine pas le temps de référence t_0 comme cela peut être le cas avec la moyenne temporelle utilisée dans les fonctions d'autocorrélation en DLS ou en DWS. Cette propriété est intéressante si on veut étudier la dynamique du système à différents temps.

Il existe néanmoins trois limites principales à la technique MSDWS. Avant de les énoncer, nous appellerons T_i la durée minimale entre deux images et $T_{shutter}$ le temps d'intégration par image. Une première limite est liée à la fréquence d'acquisition des images par la caméra. On ne peut pas mesurer des temps caractéristiques inférieurs à T_i. Par exemple, la caméra utilisée dans nos expériences prend 15 images par seconde, les temps caractéristiques sondés seront donc supérieurs à 60 ms. La deuxième limite est liée à l'obturateur de la caméra. Si les particules se déplacent rapidement pendant $T_{shutter}$ les images seront floues. La MSDWS ne peut donc pas sonder la dynamique des systèmes aux temps

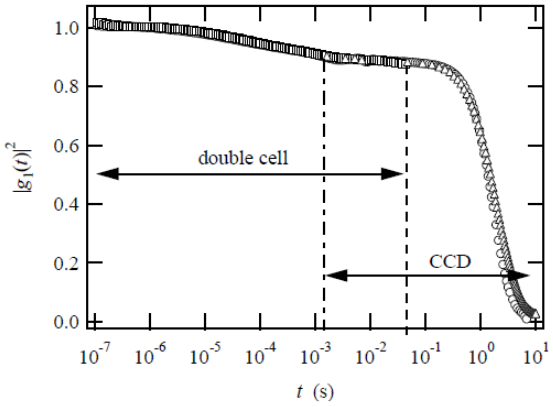


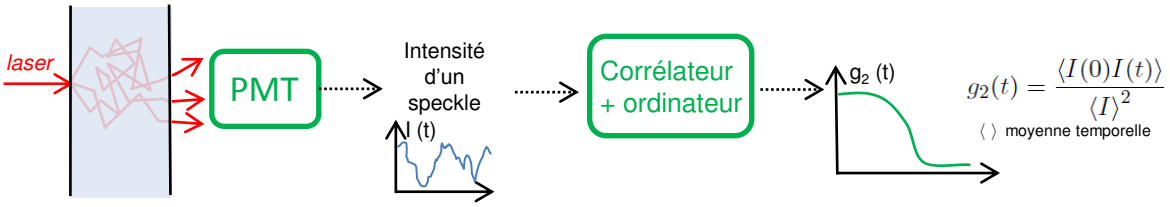
FIGURE 3.7 – Fonction d'autocorrélation ($|g_1(t)|^2$) pour une suspension de sphères de latex immergées dans du glycérol mesurée par une méthode de DWS en double cellule et une méthode MSDWS. D'après Viasnoff *et al.* [159].

courts et on retiendra que les échelles de temps accessibles sont comprises entre quelques millisecondes et 10^4 secondes. La figure 3.7 compare la fonction d'aucorrélation obtenue par une méthode DWS (mesure avec une double cellule) et une méthode MSDWS. On voit alors que la DWS permet de sonder la dynamique rapide du système alors que la MSDWS est plus adaptée aux dynamiques lentes. La troisième limite est liée à la faible sensibilité de la caméra par rapport à un photomultiplicateur. Il n'est pas possible d'étudier des systèmes avec une faible intensité du signal diffusant. De plus, le bruit est plus important qu'avec un photomultiplicateur.

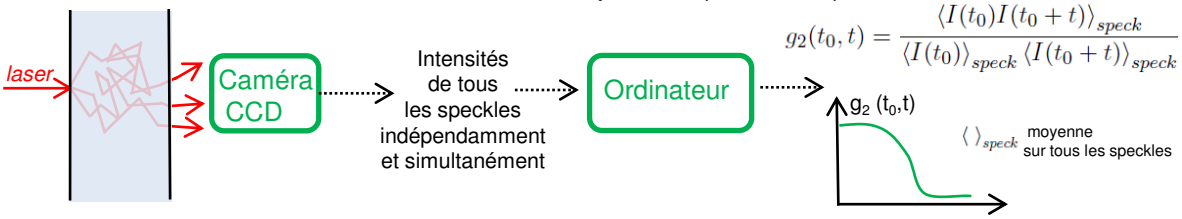
Résumé :

La diffusion multiple de lumière permet de suivre la dynamique des particules dans des systèmes turbides, voire opaques. La mesure de l'intensité diffusée est analysée par une fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité diffusée $g_2(t)$. On retiendra deux méthodes : la diffusion de lumière (DWS) pour étudier la dynamique rapide et la diffusion de lumière multispeckle (MSDWS) pour la dynamique lente. On résume ci dessous leurs caractéristiques :

Diffusion multiple de lumière (DWS)



Diffusion de lumière multispeckle (MSDWS)



A partir de $g_2(t)$, il est possible de déterminer la fonction d'autocorrélation normalisée du champ diffusée $g_1(t)$ grâce à la relation de Siegert :

$$g_2(t) = 1 + \beta|g_1(t)|^2$$

Avec β un facteur de cohérence spatiale compris entre 0 et 1.

L'ajustement des données expérimentales par un modèle de diffusion brownienne par exemple permet d'avoir des informations sur la dynamique du système telles que le déplacement quadratique moyen des particules ou leur temps de réorganisation.

3.3 Étude des propriétés dynamiques aux temps longs par MSDWS et par spectroscopie mécanique

Cette partie est présentée sous la forme d'un article scientifique tel qu'il a été publié dans *Soft Matter* (2013) [104]. L'étude présentée dans le Chapitre 2 a permis de déterminer le comportement macroscopique d'une suspension granulaire vibrée modèle, comportement qui dépend de la compétition entre forces de lubrification et forces frictionnelles. On s'intéresse ici au comportement du système à une échelle beaucoup plus petite, l'échelle du grain, dans le but de relier propriétés macroscopiques et propriétés microscopiques. Pour se faire, deux techniques expérimentales s'offrent à nous : la spectroscopie mécanique qui fournit une mesure macroscopique de la dynamique et la diffusion de lumière multipseckle (MSDWS) qui donne une mesure microscopique. Nous verrons que ces deux méthodes, à priori complètement différentes, sont en réalité complémentaires.

3.3.1 Abstract

In this paper, we investigate the dynamics of vibrated granular suspensions by mechanical spectroscopy and multi-speckle diffusing wave spectroscopy (MSDWS), with the aim of relating microscopic dynamical mechanisms, at a grain scale, to the resulting macroscopic rheological behavior of the samples. Rheological experiments reveal that the samples exhibit a Maxwellian behavior at low frequencies leading to $\eta_0 = G\tau_R$, where η_0 is the low shear viscosity of the suspension (Newtonian plateau), G is the shear modulus (modulus of rigidity) and τ_R is the longest relaxation time. The two macroscopic parameters, G and τ_R, of the Maxwell model can be related to structural parameters in order to link microscopic and macroscopic levels. To do so, in a first step, we show that the macroscopic parameter G is related to the structural parameters σ_f and γ_c through the relation $G = \sigma_f/\gamma_c$ where σ_f is the frictional stress and γ_c the critical strain corresponding to the onset of contacts breaking. In a second step we show that the relaxation time τ_R, determined by mechanical spectroscopy, matches precisely the decorrelation time τ_D, extracted independently from local optical measurements. We show that, similarly to the plateau viscosity η_0, both are controlled by the dimensionless Peclet number Pe_{lub} in that $\tau_R \propto 1/Pe_{lub}$ and $\tau_D \propto 1/Pe_{lub}$ where $Pe_{lub} = \sigma_{lub}/\sigma_f$ has been defined in a previous article as the ratio of the lubrication stress, induced by vibrations, and the frictional stress [Hanotin *et al., Phys. Rev. Lett.*, 2012, **108**, 198301].

3.3.2 Introduction

The mechanical properties of granular suspensions with particle diameter above few microns control numerous natural phenomena such as mudslides, avalanches, and debris flows. Such suspensions are, in addition, encountered in a wide range of industrial applications. They exhibit numerous complex behaviors (size segregation, formation of arches, convection rolls, dilatancy, shear localization) and although individual grains are solid, it is inappropriate to classify their collective properties as entirely solid-like or liquid-like [7]. Currently, no rheological law exists for such materials and their industrial use is often based on empirical observations. Still, although such suspensions are not thermal systems, as the thermal energy k_BT in such media is negligible compared to the variation of the gravitational energy during the motion of a grain, they exhibit some similarities with classical rheologically complex media (polymers, surfactants, dispersions ...) [16]. For instance, it has been shown that the relaxation of granular suspensions under weak mechanical perturbations, such as shaking, bears some formal analogy with the slow dynamics of out-of-equilibrium thermal systems [16, 160, 161, 162]. Such an analogy is based on the assumption that the most important parameter in the system is the geometry via the free volume and not the interaction between particles or the driving energy. These materials are jammed at rest and a finite small perturbation induced by external shear or vibrations can cause the system to flow [72, 83, 106, 163]. In that context, we recently studied the behavior of granular suspensions subjected to vibrations in the regime where viscous forces dominate inertia at the particle scale, i.e. for Reynolds number smaller than 1 [90]. For dense granular suspensions of spherical particles (with diameter d) immersed in a Newtonian fluid of viscosity η_f and subjected to sinusoidal vibrations (amplitude A and frequency f), the particle Reynolds number can be expressed as $Re_p = A(2\pi f)d\Delta\rho/\eta_f$ where $\Delta\rho$ is the relative density of the beads and fluids. These experimental conditions are completely different from those classically used in the literature where the particles are immersed in water [57, 89, 88, 164]. We showed that small amplitude vibrations and viscosity of the suspending fluid strongly affect the rheology of such dense suspensions. In the low shear regime, the effective viscosity of vibrated dense suspensions decreases with increasing viscosity of the interstitial fluid. The plateau viscosity η_0 determined in steady state regime is controlled by a lubrication Peclet number, $Pe_{lub} = \sigma_{lub}/\sigma_f \propto \eta_f A(2\pi f)/\mu P_g d$, where μ is the inter-grain friction coefficient and P_g the granular pressure [90]. The introduced dimensionless number Pe_{lub} can be seen as the ratio between the lubrication stress $\sigma_{lub} \propto \eta_f A(2\pi f)/d$ that controls the repulsion between grains and facilitates their displacements and the frictional stress $\sigma_f = \mu P_g = \mu\Delta\rho\phi gz$ that ensures the internal cohesion of the packing. $\Delta\rho$ is the

relative density of the beads and fluids, ϕ the volume fraction, g the gravitational constant and z the depth at which the measurement is carried out. The suspension viscosity was shown to scale with the inverse of Pe_{lub}. This approach can be applied to squeeze flows of vibrated granular suspensions in the regime where the lubrication theory is fully valid i.e. for $Re_p < 1$. Still, the link between these rheological results and the diffusional properties of the medium at the grain scale remains unclear. It is then of prime importance to analyze in detail how vibration affects particles reorganization and how the diffusional properties of the particles are related to the experimentally measured viscosity.

The aim of the present paper is then to relate the rheological behavior of fluid saturated granular suspensions to the dynamics of the medium at the grain scale, in the lubricated regime ($Re_p < 1$). For this, we used two independent experimental ways to study the dynamical properties of granular suspensions subjected to vibrations. The first deals with mechanical spectroscopy measurements to probe the viscoelastic properties of the system. Analyzing mechanical spectra provides information on the dynamical response of suspensions for various vibration parameters, fluid viscosity and grain diameter. We show that both the dynamical response and suspension viscosity are controlled by one relaxation time (larger than the vibration period) related to the flowing behavior of the medium when vibrations are applied. We then monitor grain dynamics at long time scales using multi-speckle diffusing wave spectroscopy measurements. A typical decorrelation time is extracted and compared with that obtained by mechanical spectroscopy measurements. We show that these two times match and scale with the inverse of Pe_{lub}, which means that the macroscopic measurement of τ_R fully agrees with the microscopic measurement of τ_D.

3.3.3 Mechanical spectroscopy

3.3.3.1 Experimental section

Material and methods. We study the viscoelastic behavior of dense gravitational suspensions (volume fraction $\phi \approx 0.61$) composed of non-colloidal monodisperse particles immersed in a Newtonian fluid subjected to simultaneous shear and vibrations. The studied material is made up of Whitehouse Scientific spherical glass beads ($\rho_p \approx 2400$ kg.m^{-3}) immersed in Emkarox-water mixtures[17] ($\rho_f \approx 1032$ kg.m^{-3}). Three different sizes are used, with diameters $d = 49 \pm 3$ μm, 100 ± 8 μm and 335 ± 15 μm. Different fluid viscosities were employed, ranging from 40 to 160 mPa.s. Viscoelastic mea-

17. Emkarox is a mixture of polypropylene glycol and polyethylene glycol. Soluble in water, it can be mixed in water to have different values of viscosity for the interstitial fluid. Even very viscous, this fluid remains Newtonian.

surements were obtained mechanically using a stress imposed rheometer (AR 2000, TA Instruments) by imposing a sinusoidal stress defined by $\sigma(t)=\sigma_o \sin(\omega t)$ with σ_o, the oscillation amplitude and ω, the angular frequency. The sample was placed into a "powder cell", composed of a cylindrical baffled cup (25 mm radius ; 5 mm baffle width) connected to a vibration shaker (Bruel&Kjr) [25] (Fig.3.8(a)). The rheometric measurements were carried out using a four blade vane device (10 mm radius ; 30 mm length) plunging into the cylindrical cup. The characterization cell is then analogous to a virtual Couette cell with an annular gap equal to 10 mm. The sample was also subjected to vertical sinusoidal vibrations, of controlled frequency and amplitude [25]. By analogy to a shear stress, we can define a mechanical vibration stress σ_v expressed as the mechanical energy supplied to the system per unit volume of a harmonic oscillator of the same mass as the sample, hence $\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$ with ρ_s the density of the system, A and f the amplitude and frequency of vibrations, respectively. The vibrations amplitudes and frequencies used varied from 30 to 1075 μm and from 30 to 60 Hz, respectively.

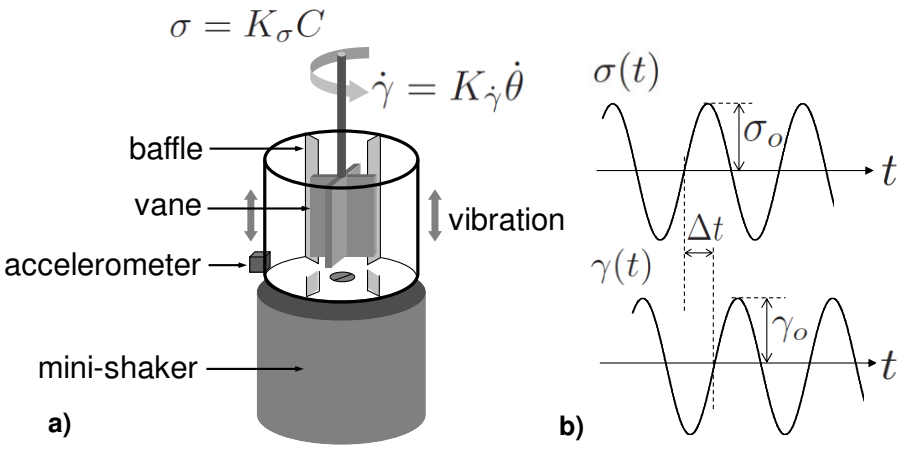


FIGURE 3.8 – a) Experimental setup. b) Measurements principle in oscillatory regime, for viscoelastic measurements.

Measurements principle. (Fig.3.8 (b)) Before the actual measurement of mechanical spectra, a stress sweep experiment was carried out to define the linear viscoelasticity domain of the investigated material. In such an experiment, the oscillation amplitude σ_o is increased from 1 to 1000 Pa, at a fixed frequency $\omega = 1$ rad.s^{-1}. Figure 3.9(a) shows the typical evolution of the elastic (G') and viscous (G'') moduli as a function of σ_o. For the conditions used in that particular experiment, both moduli are independent of the stress for $\sigma_o \leq 50$ Pa, and the linear viscoelasticity range is then defined for all σ_o values lower than 50 Pa. This value changes slightly depending on the experimental parameters, i.e. bead size (d), fluid viscosity (η_f) and vibration stress (σ_v), but in any case for all samples, a value of

$\sigma_o = 5$ Pa is always located in the linear viscoelasticity domain. For that reason, all frequency sweep tests (variation of ω between 0.01 and 100 rad.s^{-1}, at fixed σ_o) were carried out at $\sigma_o = 5$ Pa.

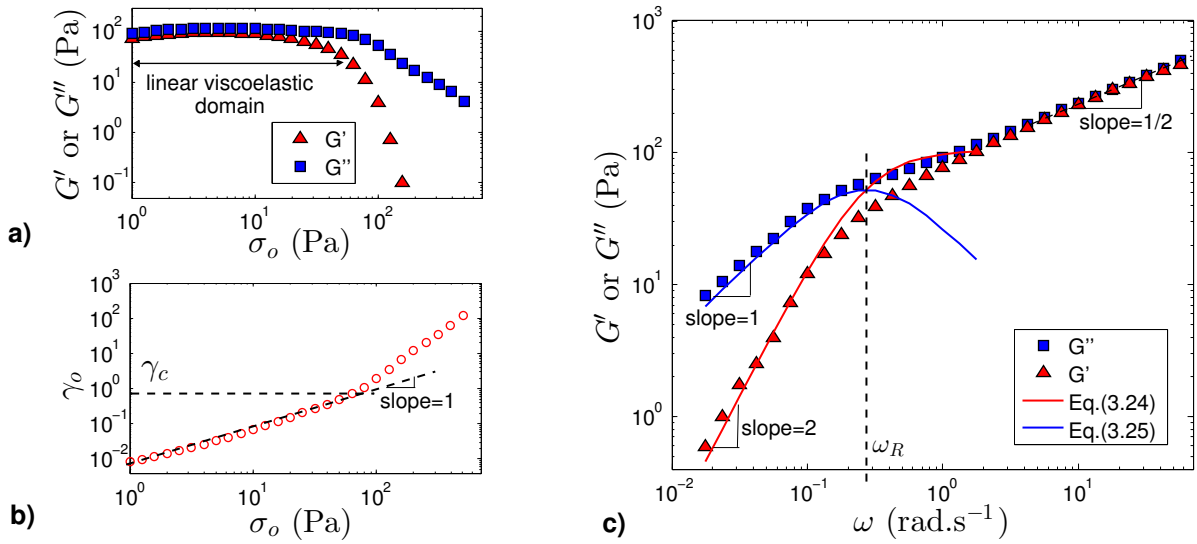


FIGURE 3.9 – (Color online) a) Stress dependence of the elastic (G') and viscous moduli (G''), at a fixed angular frequency $\omega = 1$ rad.s^{-1}, for 100 μm glass beads immersed in a 40 mPa.s Emkarox-water solution (volume fraction $\phi \approx 0.61$) and subjected to a vibration stress σ_v=12 Pa ($f = 40$ Hz, $A = 627$ μm). b) Strain dependance of G' and G'' at a fixed angular frequency $\omega = 1$ rad.s^{-1}, for the same sample. The critical strain γ_c corresponds to the end of the linear viscoelasticity domain. c) Frequency dependence of G' and G'' at a fixed stress amplitude $\sigma_o = 5$ Pa, for the same sample. The solid lines correspond to the fit of the terminal zone by Eqs.(3.24)-(3.25) (Maxwell model), with $\tau_R = \omega_R^{-1}$ the relaxation time.

3.3.3.2 Results

Overview of the viscoelastic mechanical spectrum. Figure 3.9(c) presents the frequency dependence of G' and G'' obtained for a granular suspension made up of 100 μm glass beads in a 40 mPa.s Emkarox-water solution, subjected to a vibration stress $\sigma_v = 12$ Pa ($f = 40$ Hz, $A = 627$ μm). The mechanical spectrum clearly exhibits two distinct regimes, as previously obtained by Marchal *et al.* [25, 118] on dry vibrated granular materials. At low frequencies, in the so called terminal zone, the elastic and viscous moduli display a power law behavior, $G' \sim \omega^2$ and $G'' \sim \omega$. In this region as $G'' > G'$, the sample has a liquid-like behavior (Maxwell behavior) and the flow regime is viscous. At high frequency, in the so-called glass transition zone, the two moduli are equal and are proportional to $\omega^{1/2}$ [165, 118]. The transition between the two regimes occurs at a critical frequency ω_R corresponding to a critical time $\tau_R = 1/\omega_R$. In the terminal zone, the flow of the granular suspension is due to a cage dynamics process [118], similar to what can be observed in supercooled or glassy systems [166, 167, 168]. Such a cage

effect involves at least two mechanisms, the α and the β processes [118, 169, 170, 171]. In the β process that corresponds to short times, the grains rattle around in confined areas called "cages" formed by their neighbors. In the α process that corresponds to longer times, the particles break free of their cages and are finally trapped in other cages. This latter process allows the grains to diffuse through the sample by moving from cage to cage, under the effect of vibrations, and is therefore responsible for the flow of the granular suspension. The viscoelastic time τ_R then corresponds to the α process and accounts for the average time between two cage breaking events [118]. τ_R can be determined by fitting the terminal zone on the basis of a Maxwell model, where the elastic and viscous moduli are given by [135] :

$$G' = G\frac{\omega^2\tau_R^2}{1+\omega^2\tau_R^2} \tag{3.24}$$

$$G'' = G\frac{\omega\tau_R}{1+\omega^2\tau_R^2} \tag{3.25}$$

Where G is the shear modulus (modulus of rigidity).

For the particular case displayed in Fig.3.9(c), the fit yields $G = 105$ Pa and $\tau_R = 3.7$ s $\Rightarrow \omega_R = 0.27$ rad.s^{-1}. The evolution of G and τ_R with fluid viscosity, bead size and vibration stress, corresponding to thirty experiments, were then analyzed. As far as this latter parameter is concerned, vibration stresses lower than 1 Pa were not investigated as for such values, the corresponding critical frequencies ω_R were too small ($\leq 10^{-2}$ rad.s^{-1}) to be experimentally detected.

Evolution of the viscoelastic time τ_R. Figure 3.10 displays the evolution of τ_R as a function of the vibration stress σ_v for various granular suspensions with three different values of bead size and fluid viscosity. For any given bead size and fluid viscosity, τ_R decreases when σ_v increases, and τ_R scales as $\sigma_v^{-1/2}$. Such an evolution confirms that vibrations act as a "granular temperature" [25, 78, 81]. When σ_v increases, in other words when the energy supplied to the system via the vibrations increases, this "granular temperature" also increases and the particle reorganize faster, hence τ_R decreases. Figure 3.10 also reveals that τ_R decreases with decreasing bead size, which shows that the rearrangements are faster for smaller beads. As previously shown [90], this effect can be assigned to the nature of the interactions between beads that are controlled by the lubrication stress σ_{lub}, such as $\tau_R \propto \sigma_{lub}^{-1} \propto (\eta_f A(2\pi f)/d)^{-1}$. According to the same interpretation τ_R should decrease when η_f increases, which is experimentally

confirmed in Fig.3.10.

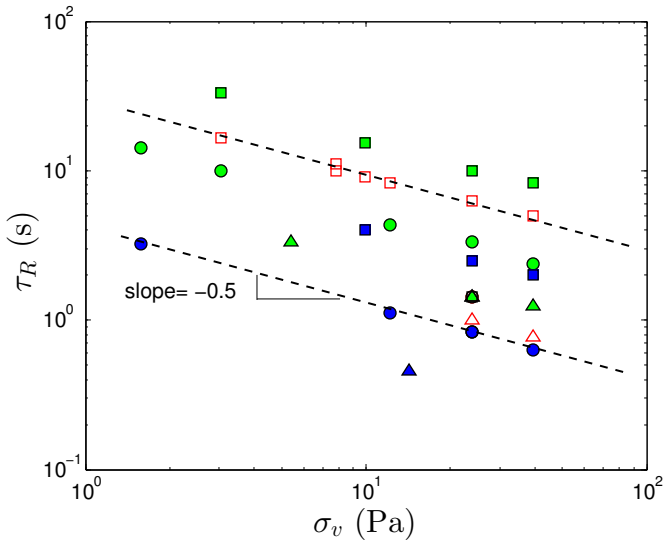


FIGURE 3.10 – (Color online) Viscoelastic time (τ_R) versus vibration stress (σ_v), for various values of bead size with diameters d= 335 μm (squares), d= 100 μm (circles) and d=49 μm (triangles) and for various Emkarox water mixtures with fluid viscosities η_f= 40 mPa.s (green), η_f= 70 mPa.s (red) and η_f= 160 mPa.s (blue).

Figure 3.11(a) displays the same experimental data re-plotted as a function of $Pe_{lub} = \frac{\sigma_{lub}}{\sigma_f}$ calculated with z = 25 mm (corresponding approximately to the middle of the sample) and $\mu \approx 0.5$ $\Rightarrow \sigma_f = \mu\Delta\rho\phi g z = 103 \pm 22$ Pa (Eq.(2) in [90]). The value of σ_f was experimentally verified in [90]. Using such a representation all data points collapse onto a single master curve. Figure 3.11(a) also displays the evolution with Pe_{lub} of the low shear viscosity at the plateau η_o, previously determined in [90] in steady state flow, that exhibits the same dependency as both quantities scale with $1/Pe_{lub}$.

Given the Maxwellian behavior of the terminal zone, the low shear viscosity plateau η_0 can be related to the relaxation time τ_R by $\eta_0 = G\tau_R$ where G is the shear modulus (modulus of rigidity). In the following, we assume that G is proportional to the yield stress of the material σ_f as previously observed in dry granular media [25] or in pastes [172] such as $G = \frac{\sigma_f}{\gamma_c}$. The proportionality constant γ_c can then be interpreted as a critical strain which corresponds to the onset of contact breaking leading to a loss of linearity [25, 172]. Its value can be determined by a stress sweep experiment, such as that performed in Fig.3.9(b), where γ_c corresponds to the end of the linear viscoelasticity domain. In the particular case of Fig.3.9(b), $\gamma_c = 0.8$. On the basis of twenty experiments realized with different values of fluid viscosity (η_f), bead size (d) and vibration stress (σ_v), we have obtained $\gamma_c = 0.82 \pm 0.39$. Figure 3.11(b) presents the evolution of both η_0 and $\tau_R\sigma_f/\gamma_c$, calculated with $\sigma_f = 103$ Pa and

$\gamma_c = 0.82$, as a function of Pe_{lub}. Such a representation yields a single master curve on which all data points gather, which leads to $\eta_0 = \tau_R \sigma_f / \gamma_c$. The shear modulus G can also be determined by the fit of the terminal zone by the Maxwell model (Eqs.(3.24)-(3.25)), such as that presented in Fig.3.9(c), which gives $G = 118 \pm 22$ Pa determined as previously on the basis of twenty experiments realized with different values of η_f, d and σ_v. This value is the same than $\sigma_f/\gamma_c = 103$ / $0.82 = 126$ Pa, within uncertainty. This comparison is coherent since the values of G, σ_f and γ_c are essentially independent of the fluid viscosity, bead size and vibration stress in the case studied here. As a result, the macroscopic parameter G determined by the Maxwell model is clearly related to the structural parameters σ_f and γ_c, which highlights a link between microscopic and macroscopic levels.

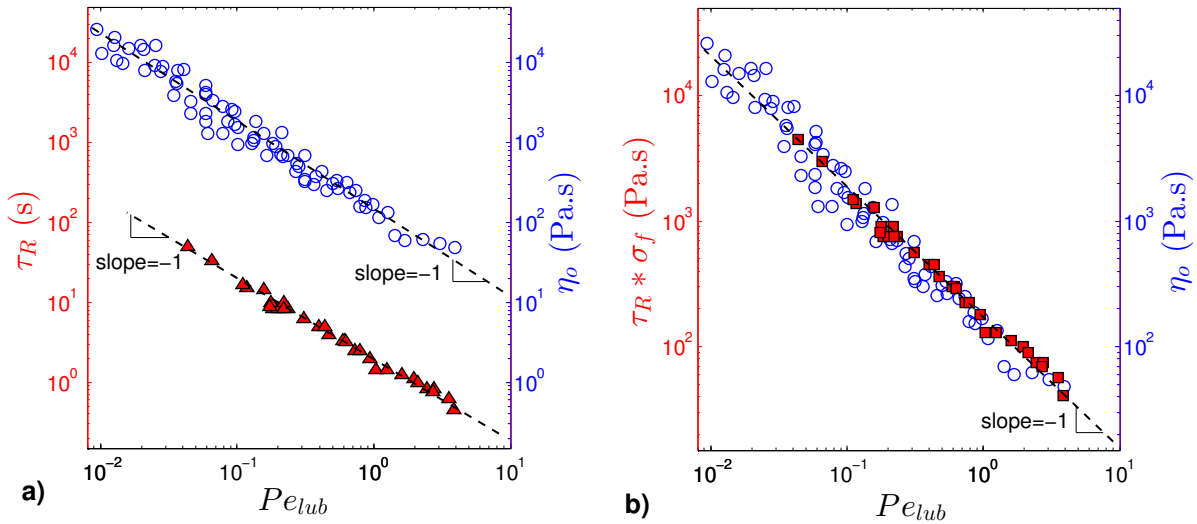


FIGURE 3.11 – (Color online) a) Evolution with Peclet number ($Pe_{lub} = \frac{\sigma_{lub}}{\sigma_f} \propto \frac{\eta_f A(2\pi f)}{d\mu P_g}$) of the low shear viscosity (η_0), adapted from [90] and determined in steady state flow, and the viscoelastic time (τ_R) determined by mechnaical spectroscopy. b) Evolution with Pe_{lub} of the product of the viscoelastic time by the quantity σ_f/γ_c (with σ_f the frictionnal stress and γ_c the critical strain) and low shear viscosity (η_0).

In the relation $\eta_0 = \tau_R \sigma_f / \gamma_c$, σ_f and γ_c are structural parameters related to the internal cohesion of the sample while τ_R represents the Maxwellian characteristic time of the system, extracted from a global macroscopic experiment. As in our experimental conditions σ_f is constant whereas τ_R varies as $1/Pe_{lub}$, the Pe_{lub} dependency of η_0 may be thus related to the microscopic rearrangement time of the grains under the effect of vibrations, as mentionned in the beginning of § 2.2 (*Overview of the viscoelastic mechanical spectrum*). In the following, diffusing wave spectroscopy experiments were performed to probe the microscopic dynamics of the system without shear flow, with the aim of linking it to the aboved described macroscopic rheological measurements. Decorrelation times obtained from

this optical technique will then be compared with the macroscopic viscoelastic times τ_R.

3.3.4 Comparison with Diffusing Wave Spectroscopy measurements

In this section, the local dynamics of granular suspensions subjected to vibrations is probed by mutli-speckle diffusing wave spectroscopy (MSDWS), a technique that is particularly well adapted to study systems with slow dynamic features [89, 158, 159, 173, 174].

3.3.4.1 Experimental section

Overview of the MSDWS technique. Classical diffusing wave spectroscopy (DWS) has been successfully used to study the dynamical features of various granular systems such as gas-fluidized beds [175, 176], water-fluidized beds [164], avalanche flows [177], vibrated granular materials [85, 87, 88, 150, 152, 178]. However, as mentioned by Zivkovic [85], using classical DWS, it is rather difficult to precisely determine the long time behavior of the system. Indeed, this technique requires a time averaging 1 to 10^4 times longer than the probed characteristic time [158, 173, 159]. According to the rheometric experiments, the characteristic time of the granular suspensions studied in the present paper ranges from 0.1 to 100 seconds (Fig.3.11(a)), which precludes the use of classical DWS. Alternative techniques, such as speckle visibility spectroscopy [178] or MSDWS [158, 159, 173] have then to be used for capturing the dynamics of our system. In this latter method (Fig.3.12), the photomultiplier tubes and the correlator are replaced by a charge coupled device (CCD) camera and a computer-controlled correlator. This setup simultaneously collects the signal from a lot of independent speckles. This allows obtaining a direct ensemble average without the need for any time average, which consequently considerably reduces the acquisition time and provides a real "snapshot" of the dynamics [159]. It must however be pointed out that MSDWS is not adapted for measuring particle dynamics at short time scales. Furthermore, for systems, with two ranges of relaxation times, only the slower will be measured by MSDWS.

Experimental setup. The sample is poured into a cylindrical Plexiglas vessel (10 mm diameter ; 1mm thickness ; 50 mm height), at a height $h = 35$ mm (Fig.3.12) [18]. For the MSDWS experiment, the sample is illuminated with a He-Ne polarized laser spot of wavelength $\lambda = 632.8$ nm. The scattering

18. The diameter of the vessel (L on Fig.3.12) has to be five times greater than the transport mean free path l^* in order to guarantee the random walk of the light in the sample [154, 157, 179]. l^* represents the average distance traveled by a photon in the sample before its direction becomes randomized. In our case, l^*, which is approximately equal to $6d$ with d the bead diameter [180], is lower than the vessel diameter L=10 mm.

volume is located at a distance z below the free surface (Fig.3.12) and the experiment is carried out in backscattering mode : the light is incident on one face of the vessel and the scattered light forming a speckle pattern is detected from the same face. A diaphragm aperture placed after a lens allows adjusting the size of the speckle spots. Two crossed polarizers are used to eliminate direct reflections coming from the vessel. An interferential filter is placed before the camera to eliminate parasitic light. The backscattered light is detected by a CCD camera, placed 10 cm behind the diaphragm. The camera records the different speckle images in 16 bits, with a size of 1392 × 1040 pixels, at 15 frames per second.

The sample is subjected to sinusoidal vertical vibrations without any oscillatory shear stress. Therefore any particle motion can be assigned to the presence of vibrations, the energy of which is controlled by the vibration stress σ_v. The amplitude and frequency of the shaker are controlled by a DACTRON COMET USB device, connected to a power amplifier and an accelerometer attached to the vessel (Fig.3.12). To probe dynamics at long time scales, the amplitude and frequency of vibrations as well as the aperture time of the camera have to be chosen to avoid fast decorrelations of the intensity due to cell vibrations. This condition can be achieved by using amplitudes that are small compared to the grain diameters and vibration periods that are short (at least four times lower [19]) with regard to the exposure times of the camera. The technique probes events occurring at long times (typically > 0.1 s) by integrating fast variations at short time scales. As a result, the oscillations or echoes classically observed at short times [87, 88], with a period identical to the forcing one, are not detected in the present case. In our experiments, as the frequency and amplitude used varied from 60 to 160 Hz and from 4 to 15 μm, respectively, the samples were subjected to vibration stresses σ_v lower than 0.1 Pa. Before any data collection, the sample is first vibrated at $f = 50$ Hz and $A = 400$ μm during 10 minutes for removing air bubbles. It is then conditioned during five minutes at the desired vibration amplitude and frequency to ensure a « stationary state »defined as the state from which the volume fraction does not change anymore.

Calculation of the intensity autocorrelation function. In the absence of vibrations, the speckle pattern does not change. Indeed, granular materials are athermal systems, insensitive to microscopic

19. The influence of the exposure time on the intensity autocorrelation function was analyzed on a vibrated fixed granular material. A piece of sand paper was fixed on the vessel, vibrated at different frequencies, at a fixed vibration amplitude ($A = 30$ μm) and a fixed exposure time (62.5 ms). For a frequency lower than 60 Hz, the intensity autocorrelation function presents oscillations. As a result,the MSDWS measurements have to be performed for vibration frequencies higher than 60 Hz for which the autocorrelation fonction $\overline{g_2(t_0,t)}$-1 keeps equal to 1 during vibrations.

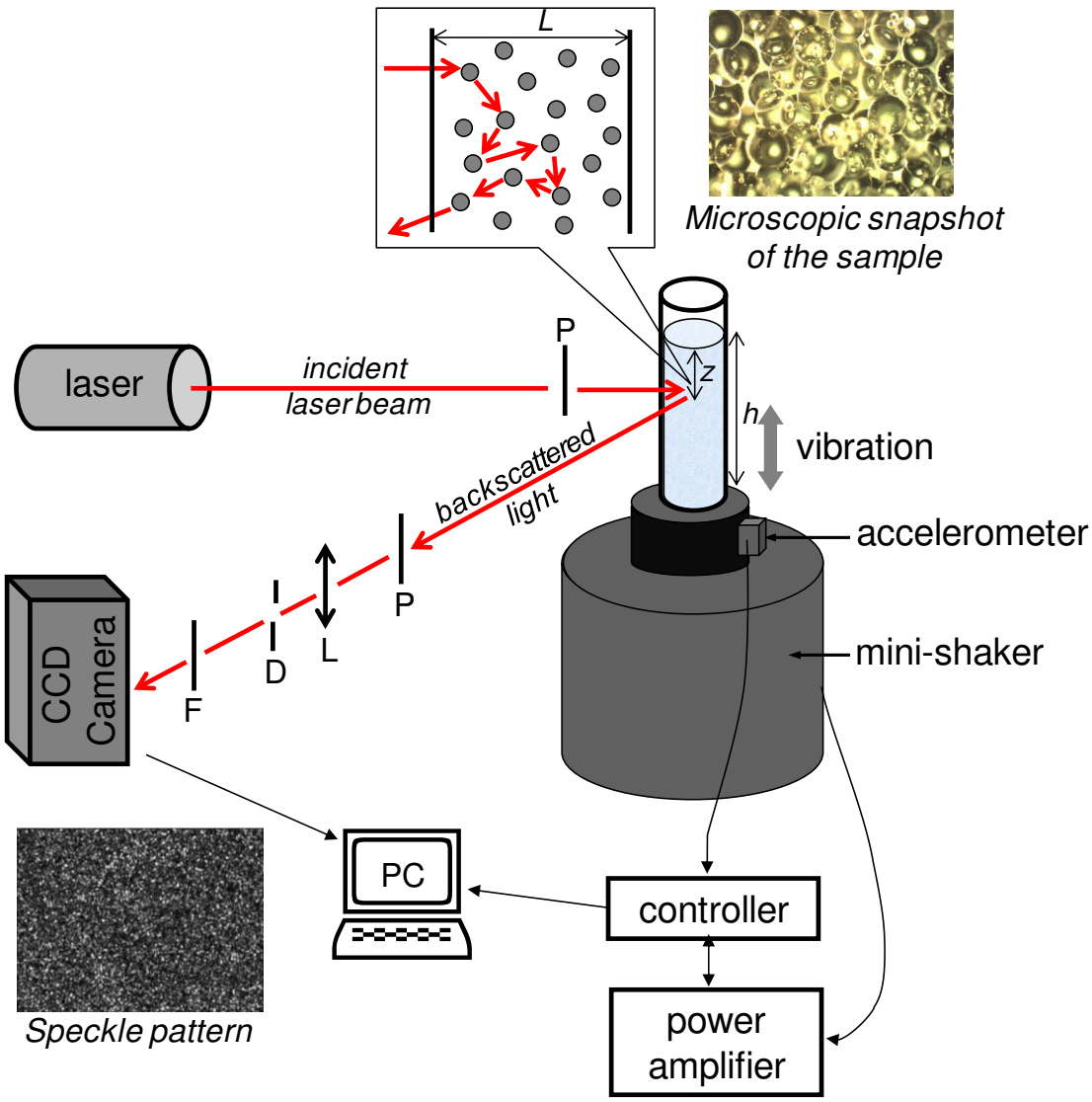


FIGURE 3.12 – (Color online) Experimental setup. The sample is subjected to vibrations by a shaker, whose the amplitude and the frequency are imposed by a controller device connected to a power amplifier and an accelerometer. For the MSDWS experiment, the incident laser beam illuminates the sample on the one face of the vessel. The backscattered light detected on the other face forms a speckle pattern which is recorded by a CCD camera. The lens (L) allows to collect more light and the diaphragm (D) allows to set the speckle size. The interferential filter (F) allows suppressing the parasite light. The reflection of the vessel is eliminated by placing two crossed polarizers (P).

Brownian motion. Therefore, the grains cannot move under the influence of the temperature. When the sample is vertically shaken, vibrations act as an external temperature [78, 81, 25] and the speckle pattern changes due to the relative motion of grains. As a result, the intensity of speckle images fluctuates over time and these fluctuations can be analyzed using the so-called intensity autocorrelation function $g_2(t)$ [154, 157, 179]. The behavior of this function provides information on the motion of the scattered particles. In the present case, the intensity autocorrelation function is given by :

$$\overline{g_2(t_0,t)} - 1 = \frac{\overline{\langle I(t_0+t).I(t_0)\rangle_{spkl} - \langle I(t_0)\rangle^2{}_{spkl}}}{\langle I(t_0)^2\rangle_{spkl} - \langle I(t_0)\rangle^2{}_{spkl}} \tag{3.26}$$

Where $I(t_0)$ and $I(t_0+t)$ are the intensities of the backscattered light respectively at the reference time t_0 and at the time t_0+t with t a delay time, $\langle\bullet\rangle_{spkl}$ is the average over different speckles, $\overline{\bullet}$ is the average over the time origin t_0. The expression of $g_2(t_0,t)-1$ is the one used by Kabla *et al.* [89] or by Caballero *et al.* [174]. In MSDWS, the correlation function is obtained by using a space average (Eq.(3.26)) [158, 173, 159], contrary to the DWS technique which only employs a time averaging method [154, 157, 179].

3.3.4.2 Results

Figure 3.13 presents typical intensity autocorrelation functions $\overline{g_2(t_0,t)}$-1 obtained for different values of the vibration stress σ_v. In backscattering geometry and assuming diffuse motion at long time scales as previously observed in [78, 81, 25], a quantitative description of the intensity autocorrelation function is given by [154, 157, 179] :

$$\overline{g_2(t_0,t)} - 1 = \beta \exp(-2\gamma\sqrt{6t/\tau_D}) \tag{3.27}$$

Where β is a phenomenological parameter, γ is a constant and τ_D is the decorrelation time.

In our experiments, γ equals to 1.3 ± 0.3 [20]. γ allows taking into account the relative contribution of short paths to the backscattering light [154, 157, 179] and is inherent to the geometry. In Fig.3.13, the experimental data appear to be correctly fitted by Eq.(3.27) [21]. Furthermore, the inset of Fig.3.13

20. Its value has been estimated by fitting the intensity autocorrelation function $\overline{g_2(t_0,t)}-1$ for a colloidal suspension made up of 300 nm diameter latex spheres in a 1.9 Pa.s Emkarox-water solution. Here, τ_D is known and equal to $(k_0^2 D)^{-1}$, where D is the diffusion coefficient given by the Stokes Einstein relation and k_0 is the light wave vector ($k_0 = 2\pi/\lambda$). In the literature, the γ values used vary between 1 and 2.5.

21. In Fig.3.13, the fits to Eq.(3.27) show systematic deviations at low values of t. This effect can be due to light absorption, which affects the intensity autocorrelation function only at short time scales [179], or it can be caused by the integration process of the intensity variations at short time scales used in MSDWS to only focus on long time scales.

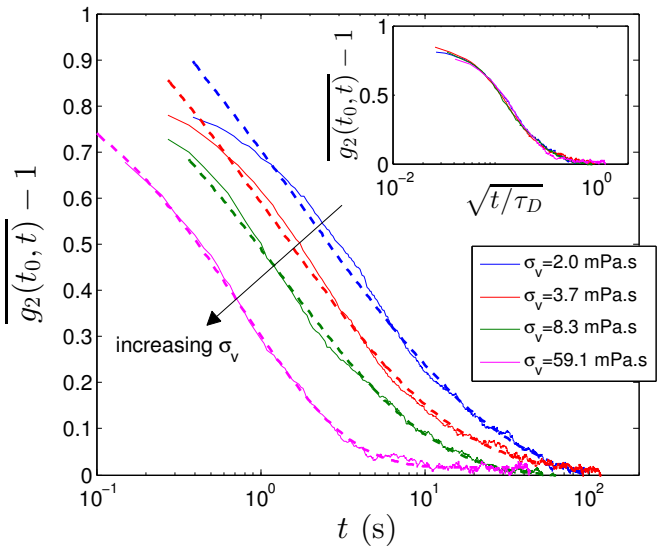


FIGURE 3.13 – (Color online) Intensity autocorrelation function ($\overline{g_2(t_0,t)}$-1) obtained for four different vibrations stresses (σ_v), for 200 μm glass beads immersed in a 35 mPa.s Emkarox-water solution (volume fraction $\phi \approx 0.61$). The solid lines represent the experimental data and the dashed lines materialize the fit given by Eq. (3.27). In the inset, the same data are represented as a function of $\sqrt{t/\tau_D}$ with τ_D the decorrelation time extracted from the fit.

reveals that all the functions $\overline{g_2(t_0,t)}$-1 fall onto a master curve when plotted as a function of the reduced time $\sqrt{t/\tau_D}$. It then appears justified to use Eq. (3.27) for fitting our experimental data to extract the decorrelation time τ_D.

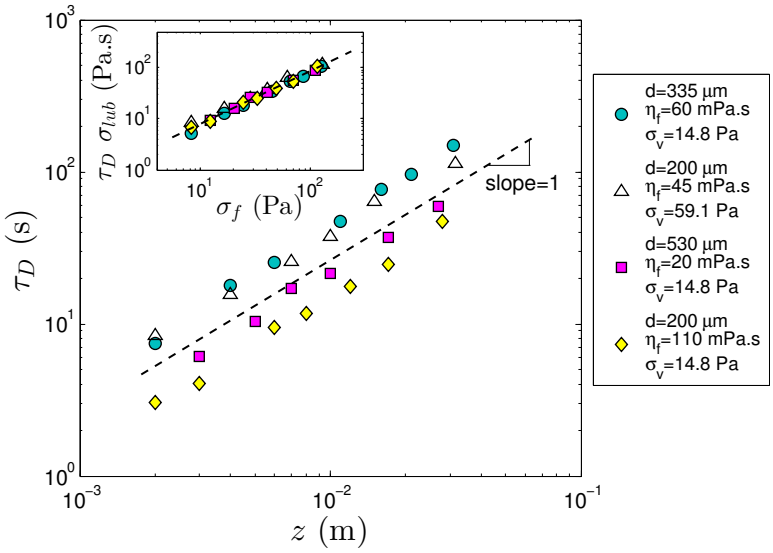


FIGURE 3.14 – (Color online) Evolution of the characteristic decorrelation time (τ_D) as a function of the height of grains between the scattered volume and the free surface (z) (Fig.3.12), for various values of bead size (d), fluid viscosity (η_f) and vibration stress (σ_v). The inset represents the variation of the product of τ_D by the lubrication stress ($\sigma_{lub} \propto \frac{\eta_f A(2\pi f)}{d}$) as a function of the frictional stress ($\sigma_f = \mu P_g = \mu \Delta\rho\phi g z$ with μ the frictional coefficient and P_g the granular pressure).

Figure 3.14 presents the evolution with the distance from the free surface z of the sample (Fig.3.12) of τ_D for various samples. Being able to probe the influence of this parameter (that cannot be analyzed in rheological experiments) represents a definite advantage as it allows directly assessing the influence of σ_f on τ_D as $\sigma_f = \mu P_g = \mu \Delta\rho\phi g z$ (Eq.(2)in [90]). For all the investigated samples, τ_D scales as z and therefore, as σ_f. For a given height, it also exhibits some dependence with bead size, suspending fluid viscosity and vibration stress. In that regard, it is noteworthy that, as shown by the inset in Fig.3.14, all the data of Fig.3.14 gather on a single master curve when plotting $\tau_D \sigma_{lub}$ as a function of σ_f. Consequently, it is particularly relevant to plot τ_D as a function of Pe_{lub} and to compare its evolution with that of τ_R derived from rheological measurements (Fig.3.15). Since τ_R is determined for an average height of 25 mm (§ 2.2 *Evolution of the viscoelastic time* τ_R), i.e. the average depth at which the measure is carried out in the « powder cell », τ_D is measured for a distance from the free surface z of 25 mm.

It clearly appears in Fig.3.15 that τ_D, as τ_R, is controlled by Pe_{lub} and that both times evolve as $1/Pe_{lub}$. Moreover, the values of τ_D and τ_R overlap over values of Pe_{lub} extending over more than one decade, which means that the macroscopic measurement of τ_R completely match with the microscopic measurement of τ_D. As previously shown, τ_R is linked to a rearrangement of grains under the effect of vibration. It then appears that τ_D obtained from MSDWS experiments must also be linked to rearrangement processes. The decay of the intensity auto-correlation function $\overline{g_2(t_0,t)}$-1 (Fig.3.13) is related to the temporal randomization of the phases of the different diffusive light paths in the sample. As in our experimental conditions, short time dynamics is not probed, it can be that the temporal evolution of the intensity is caused by the randomization of the optical path length, and hence the phase, during rare large rearrangements. Indeed, events with large extension can strongly affect light paths as observed in coarsening foams (see Durian *et al.* [181]). In the case we investigate in the present paper, such rearrangements are driven by vibrations. Consequently, the contribution to the decay of correlation functions leads to an absorption like term [181], whereas the probability for an optical path of length s to scatter from a region that has been rearranged is proportional to $g_{1s}(\tau) \approx \exp(-nV(\tau))$ where $n = s/l^*$ is the number of times the photons scatters in the sample, l^* the transport length and $V(\tau)$ the volume fraction that has rearranged after time τ. g_{1s} is thus an ensemble average of the fraction of paths of length s that have not been randomized since time $\tau = 0$. g_{1s} is also related to τ_D by $g_{1s} \approx \exp(-2(\tau/\tau_D)(s/l^*))$. This latter formula yields Eq. (3.27) after summing over all scattering paths of lengths s for a given backscattering geometry. Comparing these two formula leads

to $\tau_D \approx \tau/V(\tau)$. Assuming that large events are uncorrelated, $V(\tau) \approx (r/l^*)^3 N_e(\tau)$ where r is the size of rearrangement events and $N_e(\tau) \approx \tau/\tau_R$, the number of events occurring during time τ. As defined in section §2.2, τ_R is the average time interval between large events. Provided that both event size r and l^* scale with grain size, it comes $\tau_D \propto \tau_R$, i.e. what is experimentally observed in Fig.3.15. Furthermore, results displayed in Fig.3.15 strongly suggests that τ_D, as τ_R, is linked to cage breaking events. The two techniques presented here allow determining the average time interval between two cage breaking events.

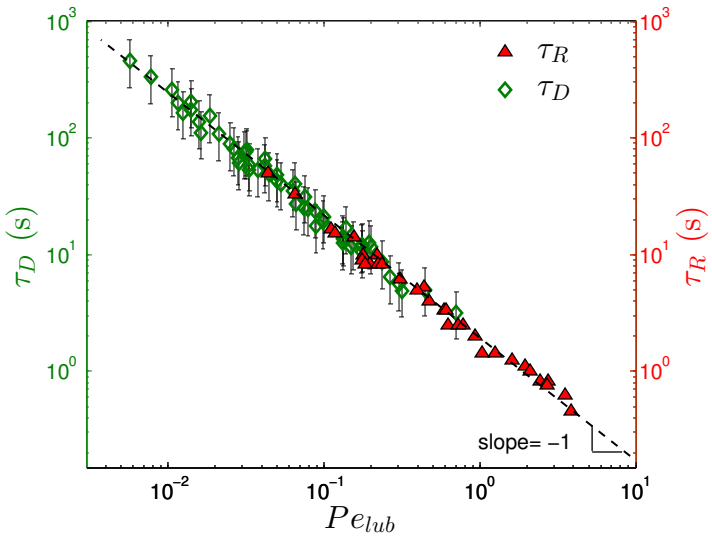


FIGURE 3.15 – (Color online) Characteristic decorrelation time (τ_D), calculated for a height of grains $z = 25$ mm, and viscoelastic time τ_R versus Peclet number ($Pe_{lub} = \frac{\sigma_{lub}}{\sigma_f} \propto \frac{\eta_f A(2\pi f)}{d\mu\Delta\rho\phi g z}$).

The observed relationship between τ_D and Pe_{lub} ($\tau_D \propto 1/Pe_{lub}$) implies that τ_D scales with the inverse of the peak vibrational velocity $v_p = A(2\pi f)$. Such a result apparently contradicts the study of Zivkovic *et al.* [88] that showed, for vibrated glass beads in water, that the system dynamics was controlled by the vibrational acceleration defined by $a_p = A(2\pi f)^2$. However, this latter result is valid only at short time scales, in the ballistic regime. In contrast, τ_D is related to long time scales, where the system behavior is controlled by viscous effects rather than by inertia ($Re_p < 1$). In the same study [88], a critical acceleration below which the granular suspension was not completely fluidized by vibrations was also evidenced. Such a threshold acceleration is not observed for the long time scales investigated in the present work, as any acceleration leads to a fluidization of the system.

Finally, since $\eta_0 = \tau_R \sigma_f/\gamma_c$, the macroscopic low shear viscosity η_0 is clearly related to the microscopic decorrelation time τ_D which is related to grain rearrangements under the sole effect of vibrations.

Consequently, its behavior cannot be assigned to structural rearrangements linked to shear banding or localization effects [36, 41, 46, 52], but only results from the internal dynamics of the system and the low shear behavior is then fully controlled by vibrations, as inferred from our previous study [90].

3.3.5 Conclusion

On the basis of mechanical and diffusing wave spectroscopy experiments, we have managed to link the macroscopic behavior of dense granular suspensions subjected to vibrations to their microscopic dynamics. Mechanical spectroscopy experiments show that dynamics is controlled by one long relaxation time, τ_R, related to the viscoelastic time of the suspension. τ_R scales with the inverse of the dimensionless Peclet number Pe_{lub} and the low shear viscosity $\eta_0 = \tau_R \sigma_f / \gamma_c$. This clearly shows that the dependence of Pe_{lub} on viscosity arises from the influence of vibrations on rearrangements kinetics. MSDWS experiments performed in the absence of any shear flow confirm these observations. Indeed, the microscopic decorrelation time τ_D extracted by this technique and interpreted as the average time between two cage breaking mechanisms displays the same dependency on Pe_{lub} as τ_R. It also shows that the scaling of η_0 with Pe_{lub} reported in [90] is inherent to vibrations and not linked to shear-induced macroscopic structural rearrangements such as shear banding or flow localization [36, 52, 41, 46]. Comparing results obtained by MSDWS and mechanical spectroscopy strongly suggests that the viscosity of vibrated granular suspensions is controlled by rearrangement dynamics at large time scale related to cage breaking mechanisms. Such mechanisms could well explain the previously observed long time diffusive behavior of vibrated granular suspensions [85, 88, 86, 150].

The MSDWS technique used in the present work integrates the fast variations of the intensity autocorrelation functions at short times scales. As a result, the technique is only sensitive to large events that appear at long times scales. In the near future, it would be of interest to probe the microscopic dynamics of these systems at times lower than the vibration period using a DWS echoes technique [85]. Analyzing the echoes of the intensity autocorrelation function for various values of bead size, fluid viscosity and vibration stress would be particularly relevant to see if the system shows the same scaling in $1/Pe_{lub}$ as that observed here for long time scales. It would also be very interesting to visualize in detail how vibrations affect the particle motion at the grain scale. This could be for example achieved by carrying out fast tomography experiments such as those recently developed in synchrotron facilities [182, 183, 184, 185].

Résumé :

Nous avons eu recours à deux techniques différentes mais complémentaires pour sonder la dynamique de la suspension granulaire vibrée aux temps longs : la spectroscopie mécanique avec le rhéomètre à poudre et la diffusion de lumière multispeckle (MSDWS).

Spectroscopie mécanique :

- les mesures sont macroscopiques
- le comportement est Maxwellien aux temps longs
- cette technique permet d'extraire le temps de relaxation le plus long du système τ_R
- $\eta_0 = G\tau_R$ avec η_0 la viscosité au plateau, G le module de cisaillement
- $G = \sigma_f/\gamma_c$ avec σ_f la contrainte frictionnelle, γ_c la contrainte critique qui marque la fin du réseau de contacts

Diffusion de lumière multispeckle (MSDWS) :

- aucun effet du cisaillement, l'échantillon est uniquement soumis à des vibrations
- les mesures sont réalisées à l'échelle du grain
- le mouvement des grains est diffusif aux temps longs
- le temps de décorrélation τ_D correspond à un temps de réarrangement collectif des grains avec des sorties de cages
- $\tau_D = \tau_R \propto Pe_{lub}^{-1}$ où $Pe_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\sigma_f d}$ (η_f la viscosité du fluide interstitiel, A et f l'amplitude et la fréquence des vibrations, d le diamètre des billes, σ_f la contrainte frictionnelle)

$\Rightarrow$ **Le comportement macroscopique de la viscosité observé aux temps longs ($\eta_0 \propto \mathbf{Pe_{lub}^{-1}}$) provient d'une cinétique de réarrangements des grains sous l'effet d'une compétition entre forces frictionnelles et forces de lubrification.**

$\Rightarrow$ **Ce comportement est inhérent aux vibrations et non à l'écoulement de cisaillement, éliminant ainsi les effets de localisation ou de bandes de cisaillement qui pourraient expliquer le comportement macroscopique rhéologique observé.**

3.4 Étude des propriétés dynamiques aux temps courts par DWS

La diffusion de lumière multispeckle est une méthode pertinente pour sonder la dynamique de la suspension granulaire uniquement soumise aux vibrations (et non au cisaillement). Néanmoins, son utilisation est restreinte aux dynamiques lentes, supérieures à 0.1 s. Pour sonder la dynamique rapide de ces systèmes ($\sim 10^{-3}$ s), il est nécessaire d'utiliser la diffusion de lumière dite traditionnelle et de remplacer la caméra CCD par un photomultiplicateur et un corrélateur de photons, ce qui permet de s'intéresser à un seul speckle et non à l'ensemble de la figure de speckles. C'est ce qu'on propose de faire dans cette partie. Les résultats obtenus permettront de répondre aux questions suivantes : comment bougent les grains aux temps courts ? Quel est l'effet du fluide interstitiel ? Est ce que le comportement est toujours dominé par les forces de lubrification et est ce que Pe_{lub} est le paramètre de contrôle pertinent ?

3.4.1 Matériel et méthodes expérimentales

Dispositif expérimental

Pour suivre la dynamique de notre suspension granulaire vibrée aux temps courts, nous avons mis au point un dispositif de diffusion multiple de lumière (Diffusing Wave Spectroscopy ou DWS) en configuration de rétrodiffusion. Le prototype expérimental est illustré en Fig. (3.16). L'échantillon étudié est placé dans une cuve cylindrique en plexiglass de 1 cm de diamètre, de 1 mm d'épaisseur et de 5 cm de hauteur. La surface libre de l'échantillon est à une hauteur $h = 35$ mm. La largeur de la cuve $L = 1$ cm permet d'être dans l'hypothèse du photon diffusif. En effet, le libre parcours moyen de transport l^*, estimé à 6 diamètres de billes [180], soit $l^* \approx 1.2$ mm pour des billes de 200 μm, est très inférieur à L. Le système est soumis à des vibrations verticales en reliant la cellule à un mini vibreur électromagnétique, identique à celui utilisé en rhéologie (type 4880, Brüel et Kjær). La fréquence et l'amplitude des vibrations sont imposées via un appareil de contrôle (*Dactron Comet Usb*, Brüel et Kjær) relié à un amplificateur et à un accéléromètre attaché à la cellule.

Le laser utilisé pour illuminer notre échantillon est un laser polarisé Hélium-Néon (Melles Griot) qui émet dans le rouge à $\lambda = 632.8$ nm avec une puissance de 30 mW. La dynamique du système est examinée en rétrodiffusion. La lumière diffusée est détectée sur la même face de la cuve sur laquelle a été envoyée le faisceau laser incident. Le polariseur (P_0) placé juste après le laser permet de régler l'intensité de celui-ci. Les deux polariseurs croisés (P_1 et P_2 en Fig.3.16) permettent d'éliminer la

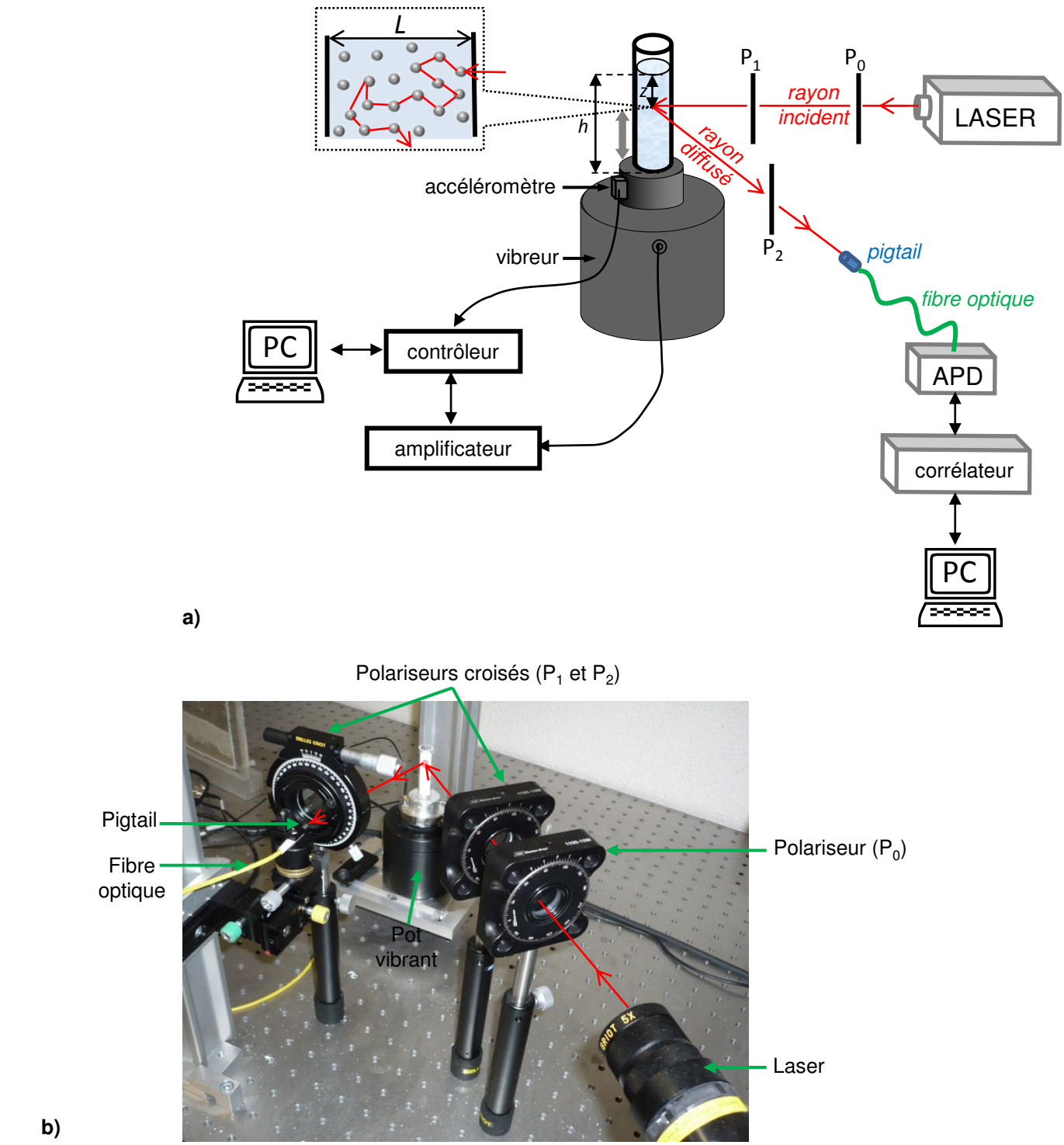


FIGURE 3.16 – a) Schéma de principe du dispositif expérimental de diffusion multiple de lumière en rétrodiffusion. b) Photo du dispositif expérimental.

réflexion de la cuve.

La lumière diffusée est ensuite détectée par une photodiode à avalanches (APD), qui transforme le signal lumineux en signal électrique. Semblables aux photomultiplicateurs, les APD sont employées

pour détecter des intensités de lumière extrêmement faibles. L'APD utilisé ici (série *SPCM-AQRH*, Excilitas Technologies) couvre une large gamme de longueurs d'onde, de 400 à 1060 nm. Pour pouvoir être détectée, la lumière en sortie de l'échantillon est d'abord collectée par un collimateur en queue de cochon (*pigtail* en anglais) (AMS Technologies) puis conduite par une fibre optique (AMS Technologies) jusqu'à l'APD. La fibre optique étant monomode, les rayons lumineux ne suivent qu'un seul chemin. Le cœur est si fin, de l'ordre de la longueur d'onde du laser (633 nm $\simeq \lambda$), que le chemin de propagation des différents rayons lumineux est pratiquement direct. La dispersion du signal est quasiment nulle, le signal est donc très peu déformé. Le pigtail est un collimateur fibré qui permet d'obtenir un faisceau de rayons parallèles et ainsi de collecter la lumière diffusée pour l'envoyer vers la fibre optique. Il est composé d'une lentille plane convexe (focale de 2 mm) et d'un espaceur. En théorie, la DWS analyse l'intensité d'un seul speckle. Expérimentalement, il est très difficile d'obtenir rigoureusement un seul speckle. Pour s'en rapprocher, on utilise un collimateur pigtail de faible dimension, i.e. 3 mm de diamètre, pour ne laisser passer que quelques speckles. Le collimateur est également placé à une distance d'environ 19 cm de l'échantillon pour permettre d'avoir des speckles de grande taille avec une intensité suffisante.

Le signal en sortie de l'APD est ensuite traité par un corrélateur multiple tau (ALV 7002 USB). Ce corrélateur est composé d'une cascade de corrélateurs linéaires. Cette appareil donne en temps réel la fonction de corrélation $\langle I(0)I(t)\rangle$, avec $I(0)$ et $I(t)$ l'intensité du signal diffusé respectivement à l'instant initial et à l'instant t, $\langle\ \rangle$ la moyenne temporelle. Normalisée par le carrée de l'intensité moyenne $\langle I\rangle^2$, le corrélateur nous donne en temps réel la fonction d'autocorrélation $g_2(t)$. Celle-ci est stockée sur un ordinateur afin de pouvoir être analysée par la suite.

Caractéristiques du système étudié

La suspension granulaire modèle est constituée de billes de verre sphériques et monodisperses de diamètre $d = 200 \pm 10$ μm (*Glass Microspheres*, Whitehouse Scientific Ltd), de masse volumique $\rho_p = 2400$ kg.m^{-3}. Le fluide interstitiel est préparé à partir de différents mélanges d'Emkarox et d'eau afin d'obtenir plusieurs valeurs de viscosités, à savoir $\eta_f = 22$, 70 et 300 mPa.s. Leur masse volumique est proche de celle de l'eau (Chapitre 2, tableau 2.1). Les billes sont immergées dans le fluide avec une fraction volumique globale ϕ_g de 0.61 (Eq.(2.7)). Le nombre de Reynolds particulaire $Re_p = \Delta\rho A(2\pi f)d/\eta_f$ est inférieur à 1, on se place donc dans l'hypothèse où les forces visqueuses dominent sur l'inertie à l'échelle des billes.

Procédure expérimentale

Pour cette étude, les vibrations appliquées à la suspension modèle sont sinusoïdales, la fréquence varie entre 30 et 150 Hz, l'amplitude entre 10 et 1265 μm. L'amplitude et la fréquence doivent être assez importantes pour avoir une décorrélation totale des fonctions d'autocorrélation. Les vibrations sont caractérisées par deux quantités : la vitesse $v_p = A(2\pi f)$ et l'accélération $a_p = A(2\pi f)^2$ avec f la fréquence et A l'amplitude. Jusqu'à maintenant, nous avons seulement utilisé v_p. En effet, nous avons défini l'effet des vibrations à travers une contrainte de vibration liée à v_p telle que $\sigma_v = 1/2\rho_s v_p^2 = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$ (Eq. (2.2)) avec ρ_s la masse volumique de la suspension. Nous allons voir dans cette partie que le paramètre pertinent pour décrire la dynamique aux temps courts de notre suspension granulaire vibrée est l'accélération. Celle-ci est généralement mise sous forme adimensionnée, à savoir $\Gamma = a_p/g$ avec g la constante gravitationnelle, Γ le nombre d'accélération.

On remplit alors la cuve avec la suspension modèle jusqu'à une hauteur $h = 35$ mm. Le laser éclaire l'échantillon à une profondeur $z = 2$ cm par rapport à la surface libre (Fig.3.16). L'échantillon est soumis pendant 10 min à une forte énergie de vibration ($f = 50$ Hz, $A = 400$ μm) avant de collecter des données afin d'assurer un état stationnaire du système (fraction volumique quasiment constante au cours du temps). Le lecteur se réferrera au Chapitre 2 pour plus de détails. On se met ensuite dans les conditions de vibration désirées.

Expérimentalement, le corrélateur nous donne accès à la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité $g_2(t) - 1$, obtenue en collectant et en corrélant des données toutes les 30 s. La figure 3.17(a) montre la fonction $g_2(t) - 1$ dans le cas de billes de verre immergées dans un fluide de viscosité 300 mPa.s, vibrées à $f = 70$ Hz , $A = 162$ μm. L'analyse des données se fait en deux étapes. La première consiste à appliquer la relation de Siegert (Eq.3.5), i.e. $g_2(t) = 1 + \beta|g_1(t)|^2$, afin de déterminer la fonction d'autocorrélation normalisée du champ électrique $g_1(t)$ (Fig.3.17(b)). Étant donné que $\lim_{t\to 0} g_2(t) - 1 = \beta$, la valeur du paramètre phénoménologique β est estimée par l'intersection entre $g_2(t) - 1$ et l'axe des ordonnées, en moyennant les fluctuations dues au bruit expérimental de $g_2(t) - 1$ au premiers pas de temps. Ici, $\beta = 0.95$ (insert Fig.3.17(a)). Parmi toutes nos données expérimentales, on trouve $\beta \approx 1$, valeur attendue avec des polariseurs croisés. Une fois $g_1(t)$ obtenue, le but de la seconde étape est d'obtenir le déplacement quadratique moyen $\langle \Delta r^2(t) \rangle$, en inversant [22] l'Eq.(3.22), définie par $g_1(t) = \exp(-\gamma\sqrt{k_0^2 \langle \Delta r^2(t) \rangle})$ avec $k_0 = 2\pi/\lambda$ l'amplitude du vecteur d'onde et γ le facteur

22. En utilisant la fonction fsolve sous Matlab.

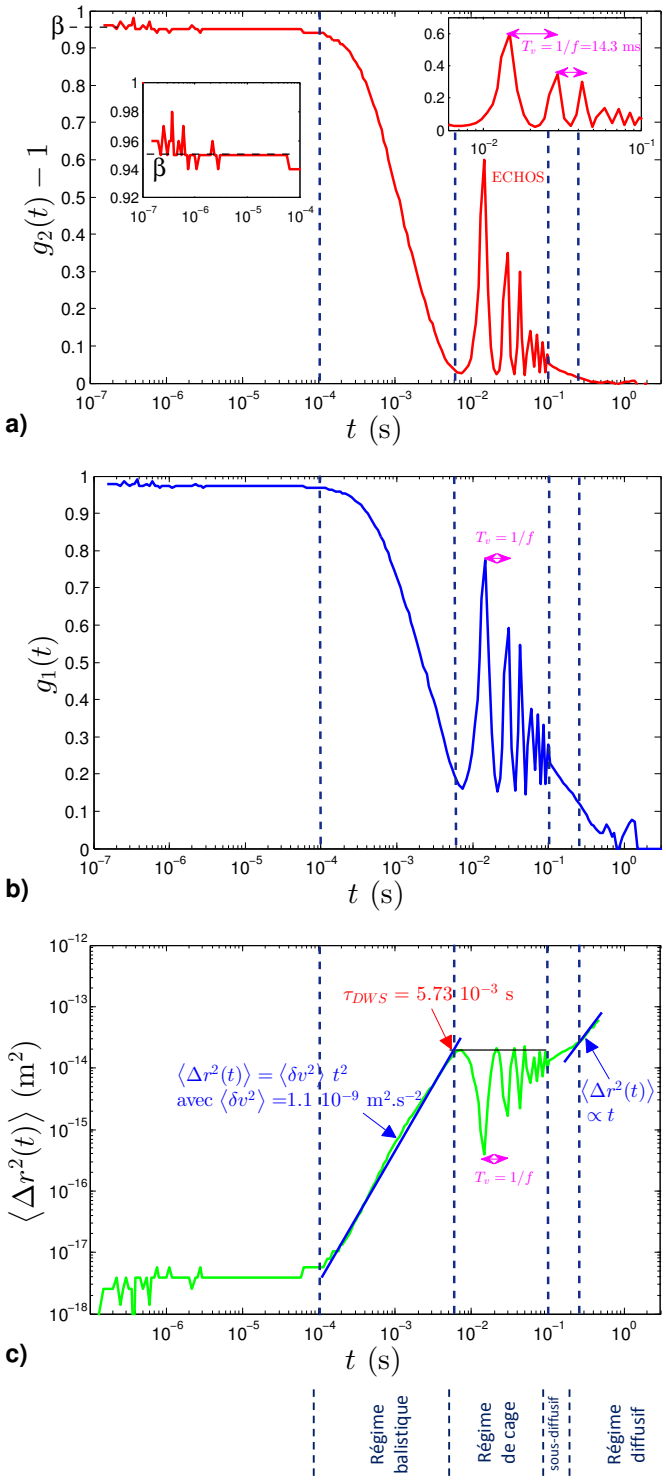


FIGURE 3.17 – a) Evolution temporelle de la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité ($g_2(t)-1$) obtenue par DWS sur un échantillon de billes de 200 μm immergées dans un fluide de viscosité η_f = 300 mPa.s, vibrée à f = 70 Hz, A = 76 μm. b) Evolution temporelle de la fonction d'autocorrélation normalisée du champ électrique ($g_1(t)$), pour le même système, obtenue par la relation de Siegert (Eq.3.5) avec $\beta = 1$. c) Evolution temporelle du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta r^2(t) \rangle$, pour le même système, obtenu par inversion de l'Eq.(3.22) .

d'échelle. On prendra $\gamma = 1.3$, valeur obtenue sur un échantillon de billes de latex (section 3.3) faisant partie des valeurs usuelles trouvées dans la littérature [88, 154, 156, 157, 176, 179, 186]. Nous allons voir dans la prochaine section que l'exploitation de cette courbe permet d'obtenir le temps caractéristique de la dynamique du système aux temps courts τ_{DWS} ainsi que la vitesse moyenne des fluctuations des particules $\left\langle \delta v^2 \right\rangle^{1/2}$. On s'intéresse alors à l'évolution de ces deux paramètres en fonction de l'amplitude (A) et de la fréquence (f) des vibrations ainsi que de la viscosité du fluide interstitiel (η_f).

3.4.2 Résultats et discussions

Du régime balistique vers le régime diffusif

Revenons dans un premier temps sur l'allure de la courbe $g_2(t)-1$ en fonction du temps (Fig.3.17(a)). Sur les premiers temps de mesure, la fonction $g_2(t)-1$ reste constante avec $g_2(t)-1 \approx 0.95$ sur environ 3 décades (entre 10^{-7} et 10^{-4} s) puis chute pour atteindre 0.029 à $t = 6$ ms. La courbe présente ensuite des oscillations, plus connues sous le nom d'échos, qui apparaissent à une période égale à celle des vibrations notée $T_v = 1/f = 0.0143$ s avec $f = 70$ Hz, la fréquence des vibrations. L'amplitude des ces échos diminue au cours du temps, signe d'un mouvement apériodique des particules. On s'intéressera dans un premier temps à l'évolution de l'amplitude du premier écho en fonction des paramètres de vibrations (A et f) et de la viscosité du fluide interstitiel. A $t \approx 0.1$ s, la courbe $g_2(t) - 1$ affiche une seconde chute pour ensuite tendre vers 0 aux temps longs.

La fonction $g_1(t)$ (Fig.3.17(b)) présente le même comportement, avec une seconde chute beaucoup plus marquée. Néanmoins, il est difficile de mener une analyse fine de cette seconde décorrélation. On voit ici les lacunes de la technique de diffusion de la lumière dans sa version avec photomultiplicateur (PMT), qui ne parvient pas à capturer les dynamiques lentes mais qui est parfaite pour sonder la dynamique du système aux temps courts. Nous avons vu que le comportement aux temps longs pouvait être obtenu par la technique de diffusion de lumière multispeckle avec une caméra CCD. On voit donc l'intérêt de coupler les deux techniques.

A partir des données de $g_1(t)$, on peut extraire le déplacement quadratique moyen $\left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle$ par inversion de l'Eq.(3.22). La Figure 3.17(c), qui représente ainsi l'évolution temporelle de $\left\langle \Delta r^2(t) \right\rangle$, présente quatre régions distinctes relatives aux mouvements des particules. L'interprétation donnée ici reprend celle proposée par Zivkovic *et al.* [88] dans le cas de billes de verre immergées dans de l'eau. La première région entre 10^{-4} s et 6 ms, liée à la première décorrélation de la fonction $g_1(t)$, est attribuée à un mouvement balistique des grains (Fig.3.18(a)). Après un vol libre, chaque particule rentre en

collision avec une autre. La seconde région (entre 6 ms et et 0.1 s), associée à l'apparition des échos, peut être octroyée à un mouvement de cage. Les particules bougent à l'intérieur des cages formées par leurs voisines (Fig.3.18(b)). La troisième et la quatrième région, liées à la seconde décorrélation de la fonction $g_1(t)$, sont attribuées respectivement à un régime sous diffusif où $\langle \Delta r^2(t) \rangle \propto t^\alpha$ avec $\alpha < 1$ et un régime purement diffusif où $\alpha = 1$ (Fig.3.17(c)). Il est difficile d'interpréter et d'analyser ces deux dernières régions avec la technique DWS. On se référera à l'étude que nous avons menée dans la partie précédente avec la diffusion multispeckle où la chute de $g_1(t)$ aux temps longs est attribuée à un mouvement collectif de réorganisation des particules pouvant donner lieu à des réorganisations de cages (Fig.3.18(c)).

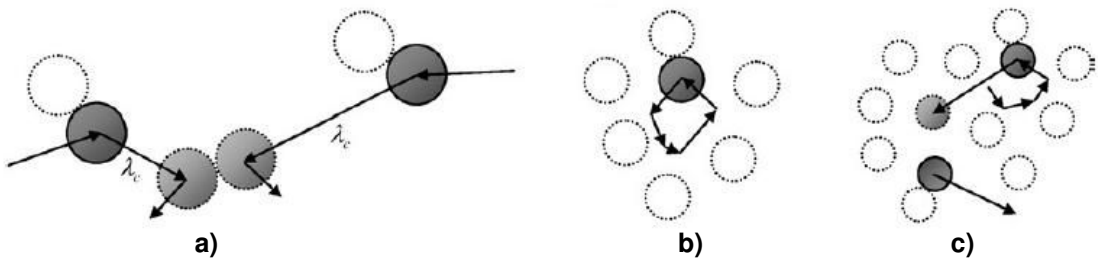


FIGURE 3.18 – Représentation schématique du mouvement des particules dans un milieu granulaire vibré : a) mouvement balistique des grains (λ_c, distance parcourue entre deux collisions), b) mouvement d'un grain dans la cage formée par ses voisins, c) mouvement collectif des grains qui sortent de leur cage pour aller dans une autre. D'après Zivkovic *et al.* [85].

On s'intéressera par la suite uniquement à la dynamique du système aux temps courts, dans le régime balistique. Dans cette région, les données expérimentales peuvent être ajustées par la relation suivante :

$$\langle \Delta r^2(t) \rangle = \langle \delta v^2 \rangle t^2 \tag{3.28}$$

Avec $\langle \delta v^2 \rangle$ la moyenne quadratique des fluctuations de vitesse des particules. Cette quantité est reliée à la température granulaire moyenne T_g par $T_g \propto \langle \delta v^2 \rangle$ [187, 188].

Il arrive parfois que le comportement de $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ s'écarte d'un comportement en t^2. Zivkovic *et al.* [88] attribue ce phénomène soit à une multiplicité des collisions, soit à la présence du fluide. Pour remédier à ce problème, nous proposons de définir la valeur du temps de décorrélation par l'intersection des tangentes, comme indiqué en Fig.3.17(c). Le produit de τ_{DWS} par la moyenne des fluctuations de vitesse $\langle \delta v^2 \rangle^{1/2}$ permet de donner une estimation de l'échelle de longueur Δs sondée par cette technique. Dans l'exemple donné en Fig.3.17(c), on obtient $\langle \delta v^2 \rangle = 1.1\ 10^{-9}$ m^2.s^{-2} et $\tau_{DWS} = 0.00573$ s, ce qui nous donne $\langle \delta v^2 \rangle^{1/2} = 0.033$ mm.s^{-1} et $\Delta s = \langle \delta v^2 \rangle^{1/2} \tau_{DWS} = 190$ nm.

La technique DWS permet donc de sonder la dynamique du système sur des échelles de l'ordre du nanomètre. Il est tentant d'interpréter τ_{DWS} et Δs respectivement comme un temps moyen de collision entre deux particules et comme le libre parcours moyen des particules. Cette valeur est à considérer avec précaution car il existe des erreurs sur la mesure du fait de la présence du second plateau qui induit une perte de résolution [88].

Transition de jamming

On s'intéresse ici aux échos qui apparaissent après la première décorrélation des fonctions d'autocorrélation. Imaginons le cas où la fonction d'autocorrélation oscille avec la même période ($T_v = 1/f$) et avec une amplitude constante, i.e. $g_1(t) = 1$ pour $t = nT_v$ avec n un nombre entier. Étant donné que le volume d'échantillon est toujours le même au cours de l'expérience, ceci implique que les particules ne bougent pas sous l'effet des vibrations. Le système a un aspect solide. Dans le cas de la figure 3.17(b), les oscillations apparaissent avec la même période ($T_v = 1/f$) mais leur amplitude diminue au cours du temps ($g_1(t = nT_v)$ diminue au cours du temps). Ce résultat suppose que certaines particules présentent un mouvement oscillatoire périodique alors que d'autres se déplacent les unes par rapport aux autres sur l'échelle d'une période de vibration. Le système n'est donc pas complètement solide puisque les grains bougent.

Kim *et al* [87] ont montré que les milieux granulaires secs vibrés présentaient une transition de comportement entre un état vitreux pour des nombres d'accélération $\Gamma < 1$ ($g_1(t = nT_v) = 1$ avec n un nombre entier) vers un état complètement fluide pour $\Gamma > \Gamma_m$ ($g_1(t = nT_v) = 0$). Pour $1 < \Gamma < \Gamma_m$, l'amplitude des oscillations diminuent au cours du temps et le comportement est intermédiaire entre un comportement solide et un comportement complètement fluide. Le nombre d'accélération critique Γ_m est appelé seuil de fluidisation, sa valeur est proche de l'unité. Est ce que notre suspension granulaire modèle présente ce même comportement ? Pour réponde à cette question, on s'intéresse ici à l'évolution de la hauteur du premier écho $g_1(t = T_v)$ en fonction des paramètres de vibrations (A et f) pour trois suspensions granulaires avec des valeurs de viscosité de fluide interstitiel (η_f) différentes.

La figure 3.19 montre l'évolution de $g_1(t = T_v)$ en fonction de la vitesse de la cellule $v_p = A(2\pi f)$ (a) et du nombre d'accélération $\Gamma = a_p/g = A(2\pi f)^2/g$ (b) pour différentes valeurs de fréquence et amplitude de vibrations et différentes valeurs de viscosité de fluide. Premièrement, la dynamique du système semble être contrôlée par le nombre d'accélération Γ et non par la vitesse de la cuve v_p. En effet, tous les points de la figure 3.19(a) se rassemblent sur une même courbe maîtresse lorsque

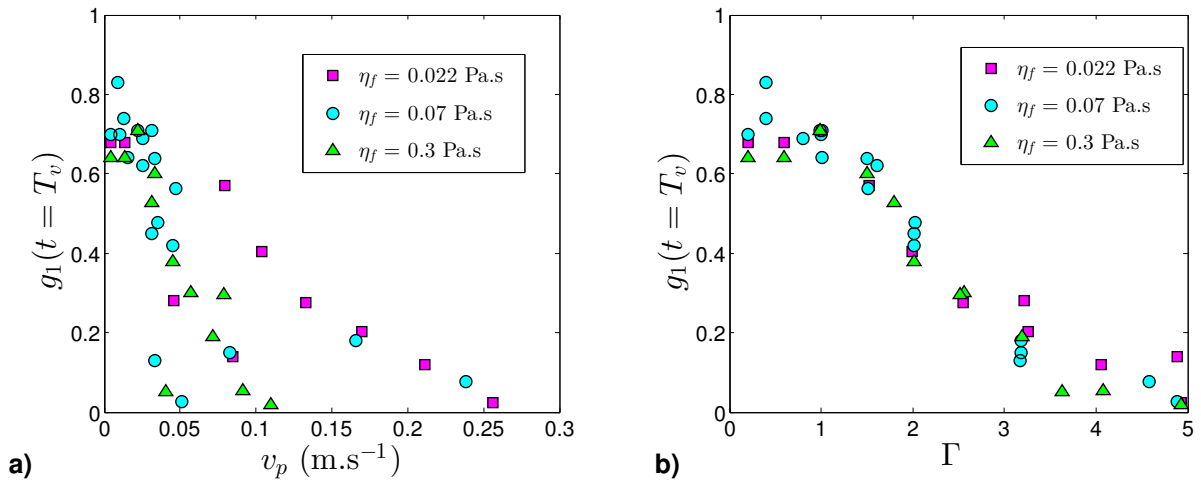


FIGURE 3.19 – Evolution de l'amplitude de la première oscillation ou écho de la fonction normalisée du champ électrique ($g_1(t = T_v)$)en fonction de a) la vitesse de la cuve ($v_p = A(2\pi f)$ avec A l'amplitude, f la fréquence), b) en fonction du nombre d'accélération ($\Gamma = a_p/g = A(2\pi f)^2/g$ avec $a_p = A(2\pi f)^2$ l'accélération de la cuve et g la constante gravitationnelle).

$g_1(t = T_v)$ est tracée en fonction de Γ au lieu de v_p. Or, aux temps longs, nous avons montré à la fois par diffusion de lumière et par spectroscopie mécanique que la dynamique du système était contrôlée par v_p. Plus exactement, le comportement du système dépend du nombre de Péclet de lubrification $Pe_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/\sigma_f d$. De plus, la figure 3.19(b) montre que la valeur de $g_1(t = T_v)$ ne dépend de la viscosité du fluide η_f, pour une valeur de Γ donnée. Par conséquent, le système semble contrôlé par des mécanismes relativement différents aux temps courts et aux temps longs, à savoir les effets inertiels (indépendant de la viscosité du fluide) aux temps courts et les effets de lubrification aux temps longs.

Intéressons nous désormais plus en détails à la dépendance de $g_1(t = T_v)$ en fonction du nombre d'accélération Γ (Fig.3.19(b)). La figure Fig.3.19(b) montre également que $g_1(t = T_v)$ n'atteint jamais la valeur de 1 : le milieu ne se comporte jamais parfaitement comme un solide, même pour de très faibles valeurs de Γ, contrairement aux milieux granulaires secs. Zivkovic *et al.* [88] ont observé un phénomène similaire pour des billes dans de l'eau en l'attribuant à la présence des forces visqueuses. Pour $\Gamma \gtrsim 1$, on constate que $g_1(t = T_f)$ diminue quand Γ augmente : le nombre de particules avec un mouvement apériodique et donc le degré de fluidisation du système augmente quand Γ augmente. Pour $\Gamma = \Gamma_m$ avec $\Gamma_m \approx 5$ le seuil de fluidisation, les échos disparaissent ($g_1(t = T_v) = 0$). On peut considérer que le système est complètement fluidisé au delà de Γ_m. Nous n'avons pas pu réaliser des expériences au delà de $\Gamma = 5$, du fait des limites expérimentales inhérentes au pot vibrant. Pour des particules immergées dans de l'eau, les travaux de Zivkovic *et al.* [88] montrent que Γ_m est de l'ordre

de l'unité. Dans notre cas, la valeur de ce seuil (égale à 5) est beaucoup plus importante. La différence peut provenir du fait que les suspensions granulaires que nous caractérisons sont dominées par les forces visqueuses (nombre de Reynolds particulaire Re_p inférieurs à 1) alors que celles de la littérature sont contrôlées par les forces inertielles ($Re_p > 1$).

Dynamique du système dans le régime balistique

On s'intéresse désormais à la première décorrélation des fonctions d'autocorrélation qui correspond au régime balistique des grains. Le but est de regarder l'évolution du temps de décorrélation τ_{DWS} ainsi que celle de la vitesse moyenne des fluctuations des particules en fonction des paramètres de vibration (A et f) et de la viscosité du fluide (η_f) afin de caractériser la dynamique du système aux temps courts.

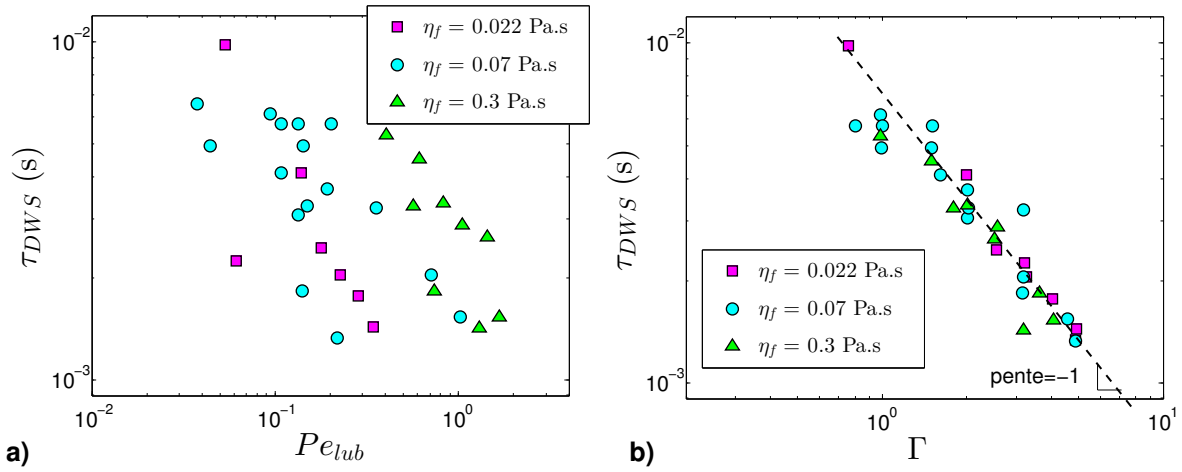


FIGURE 3.20 – Evolution du temps de décorrélation (τ_{DWS}) a) en fonction du nombre de Péclet de lubrification ($Pe_{lub} = \frac{\sigma_{lub}}{\sigma_f} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\mu P_g d}$ avec η_f la viscosité du fluide, A et f respectivement l'amplitude et la fréquence des vibrations, d le diamètre des billes, μ le coefficient de friction, P_g la pression granulaire). b) en fonction du nombre d'accélération ($\Gamma = a_p/g = A(2\pi f)^2/g$ avec $a_p = A(2\pi f)^2$ l'accélération de la cuve et g la constante gravitationnelle), pour des billes de verre de 200 μm immergées dans un fluide à différentes viscosités (η_f).

Dans la partie précédente, nous avons montré que la dynamique du système aux temps courts était radicalement différente de celle observée jusqu'à maintenant. En effet, aux temps longs, le temps de décorrélation, noté τ_D, dépend du nombre de Péclet de lubrification $Pe_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/\sigma_f d$ avec η_f la viscosité du fluide, f et A respectivement la fréquence et l'amplitude des vibrations, d la taille des particules et σ_f la contrainte frictionnelle proportionnelle à la pression granulaire. Aux temps courts, les résultats de la figure 3.19(b) tendent à faire penser que le temps de décorrélation dépend

uniquement du nombre d'accélération Γ, indépendamment de la viscosité du fluide. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons tracé en Fig.3.20 le temps de décorrélation τ_{DWS} en fonction du nombre de Péclet (a) et du nombre d'accélération (b), pour différentes valeurs de f, A et η_f. La gamme de valeurs du nombre d'accélération Γ exploitée (0.76-5) est plus petite que celle utilisée pour déterminer $g_1(t = T_v)$ (comprise entre 0.1 et 5) (Fig.3.19(b)). Ceci est dû au fait que les temps de décorrélation τ_{DWS} accessibles sont inférieurs à $T_v = 1/f$ avec f la fréquence. La plus petite fréquence exploitable étant de 30 Hz, la valeur limite de τ_{DWS} est inférieure à 0.03 s. L'amplitude la plus faible possible accessible à $f = 30$ Hz est de 210 μm, ce qui donne une valeur de Γ minimale de 0.76. En deçà de 30 Hz, des vibrations parasites apparaissent, perturbant l'analyse des données. Les figures 3.20(a) et (b) montrent clairement que le temps de décorrélation dépend de Γ et non de Pe_{lub}, tel que $\tau_{DWS} \propto 1/\Gamma$.

La figure 3.21 montre l'évolution de la moyenne de la vitesse des fluctuations $\left\langle \delta v^2 \right\rangle^{1/2}$, extraite à partir de l'ajustement des données expérimentales par l'Eq.(3.28), en fonction du nombre de Péclet de lubrification Pe_{lub} (a) et du nombre d'accélération (b). On constate une nouvelle fois que le paramètre de contrôle pertinent est effectivement Γ, tel que $\left\langle \delta v^2 \right\rangle^{1/2} \propto \Gamma$. La température granulaire, définie par $T_g \propto \left\langle \delta v^2 \right\rangle$ [187, 188], est donc proportionnelle au carré du nombre d'accélération, soit $T_g \propto \Gamma^2$. Ce résultat n'est pas sans rappeler celui donné par D'Anna *et al* [81, 82] qui ont observé, en immergeant un pendule de torsion dans un milieu granulaire sec vibré, que la température effective variait en Γ^2. Dans le cas d'une suspension de billes dans de l'eau, Zivkovic *et al.* [88] ont observé les mêmes dépendances.

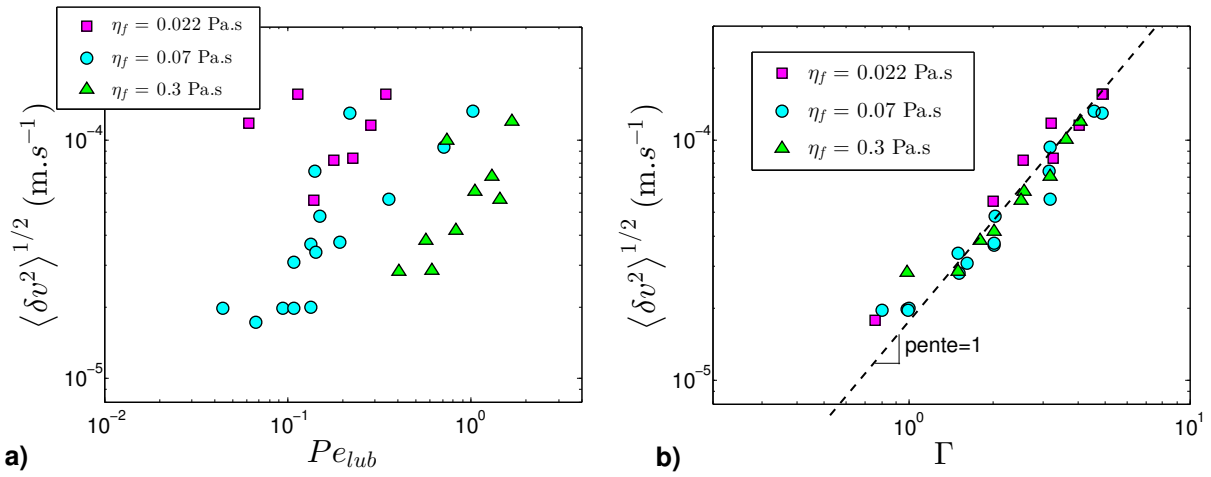


FIGURE 3.21 – Evolution de la moyenne quadratique des fluctuations de vitesse ($\left\langle \delta v^2 \right\rangle^{1/2}$) a) en fonction du nombre de Péclet de lubrification (Pe_{lub}). b) en fonction du nombre d'accélération (Γ), pour des billes de verre de 200 μm immergées dans un fluide à différentes viscosités (η_f).

3.4.3 Différence de comportement entre les temps longs et les temps courts

Nous nous sommes demandés si la différence de comportement observé aux temps longs par MSDWS et par spectroscopie mécanique et aux temps courts par DWS ne provenait pas des valeurs de nombres d'accélération Γ sondées. Aux temps courts, les expériences sont réalisées pour des nombres d'accélération compris entre 0.7 et 5. Aux temps longs, le temps caractéristique du système a été déterminé par deux techniques : la spectroscopie mécanique et la diffusion de lumière multispeckle (MSDWS). En MSDWS, les suspensions granulaires sont vibrées à des nombres d'accélération Γ inférieurs à 1 alors qu'en spectroscopie mécanique $\Gamma > 1$. Malgré cette différence, les temps sondés se superposent et varient en $1/Pe_{lub}$. La différence de comportement observée entre les temps courts et temps longs ne semble donc pas provenir de ce facteur.

Regardons plutôt la nature des contacts. Aux temps courts (entre 10^{-4}-10^{-2} s), les contacts entre grains sont collisionnels. Après chaque collision, la particule bouge de manière balistique durant un certain temps et change de direction suite à une nouvelle collision. Il est raisonnable de penser que le temps sondé en diffusion de lumière τ_{DWS} correspond à un temps de collision moyen entre deux particules. Ce temps est proportionnel à $\langle\delta\rangle / \left\langle\delta v^2\right\rangle^{1/2}$ [18], avec δ le déplacement relatif moyen des centres des particules par rapport à leur position initiale. Les particules étant dans un état dense, la valeur de $\langle\delta\rangle$ est très petite par rapport à la taille des billes d. En effet, du fait de la présence d'un réseau de contacts à tout instant, toute tentative de fluctuer pour une particule est rapidement contrée par les présence des particules voisines. D'ailleurs, les valeurs obtenues pour $\left\langle\delta v^2\right\rangle^{1/2}$, comprises entre 10^{-6}-10^{-4} m.s^{-1}, sont petites comparées à la vitesse de la cuve imposée par le vibreur, comprises entre 0.004 et 0.2 m.s^{-1}. Comme $\left\langle\delta v^2\right\rangle^{1/2} \propto \Gamma$, il en vient que $\tau_{DWS} \propto 1/\Gamma$, ce qui est effectivement observé expérimentalement (Fig.3.20(b)). Par conséquent, plus les vibrations sont importantes, plus les particules rentrent rapidement en collision.

Aux temps longs (entre 10^{-1}-10^{3} s), nous avons montré à la fois par des expériences de rhéologie et par diffusion de lumière multispeckle que les contacts prédominants sont de nature lubrifiée, de telle sorte que le temps de décorrélation varie en $1/\sigma_{lub}$ avec σ_{lub} la contrainte de lubrification définie par $\sigma_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/d$. Par conséquent, plus le fluide est visqueux, plus les contacts sont lubrifiés, ce qui implique que leur déplacement est facilité et ce qui se traduit par un temps de décorrélation plus faible. En conclusion, on peut dire qu'aux temps courts les particules ne subissent pas l'influence du fluide interstitiel alors qu'aux temps longs leur dynamique est justement dictée par la présence de ce fluide.

3.4.4 Ouverture : application à la micro-rhéologie

La diffusion de lumière permet de mesurer les modules viscoélastiques. La méthode employée, initialement développée par Mason et Weitz [189], s'est révélée plus que satisfaisante pour étudier la viscoélasticité des fluides complexes tels que des émulsions, des polymères ou des suspensions de sphères dures. Une équation de Stokes Einstein généralisée permet de relier le déplacement quadratique moyen $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ aux modules élastique $G'(\omega)$ et visqueux $G''(\omega)$ du système, avec ω la pulsation angulaire. Dans la littérature, cette méthode permet de donner des spectres mécaniques jusqu'à 9 décades. Elle permet notamment de réaliser des mesures à hautes fréquences, là où la rhéométrie classique montre ses limites du fait des problèmes d'inertie. Dans cette partie, après un bref rappel des éléments de théorie, nous appliquerons cette méthode au cas de la suspension granulaire vibrée présentée dans l'exemple de la Fig.3.17.

Éléments de théorie

La diffusion de lumière permet d'accéder à l'évolution du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ en inversant la fonction d'autocorrélation normalisée du champ électrique $g_1(t)$, elle même obtenue par la fonction $g_2(t)$. La relation de Stokes Einstein généralisée relie $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ au module élastique complexe $G^*(\omega)$. En supposant que $\langle \Delta r^2(t) \rangle \approx \langle \Delta r^2(1/\omega) \rangle$ avec $t = 1/\omega$, la relation proposée par Mason [190] est définie par :

$$|G^*(\omega)| \approx \frac{k_B T}{\pi R \langle \Delta r^2(1\omega) \rangle \Gamma[1 + \alpha(\omega)]} \tag{3.29}$$

Avec k_B la constante de Boltzmann (=1.38 10^{-23} J.K^{-1}), T la température (ici 298 K), R le rayon des particules (ici 200 μm), Γ la fonction gamma, $\alpha(\omega)$ la dérivée logarithmique locale donnée par :

$$\alpha = |\frac{d \ln \langle \Delta r^2(t) \rangle}{d \ln t}|_{t=1/\omega} \tag{3.30}$$

Le calcul de $\alpha(\omega)$ est la partie la plus délicate en termes d'erreurs. En effet, il est nécessaire de lisser la courbe $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ afin d'avoir une courbe $\alpha(\omega)$ satisfaisante. [23]

On peut alors obtenir l'évolution des modules élastique $G'(\omega)$ et visqueux $G''(\omega)$ par les deux

23. Ce lissage peut s'effectuer à l'aide des commandes "smooth" et "sgolay" de Matlab.

expressions suivantes :

$$G'(\omega) = |G^*(\omega)| \cos(\pi\alpha(\omega)/2) \tag{3.31}$$

$$G''(\omega) = |G^*(\omega)| \sin(\pi\alpha(\omega)/2) \tag{3.32}$$

Comportement aux hautes fréquences angulaires d'une suspension granulaire vibrée

L'inversion proposée pour obtenir $G'(\omega)$ et $G''(\omega)$ (Eq.3.29-3.32) est à priori valable pour des systèmes thermiques, soumis au mouvement brownien. Dans le cas des suspensions granulaires, les vibrations permettent de reproduire un mouvement brownien à l'échelle macroscopique. La source de vibrations agit alors comme un thermostat, dont la température est la température granulaire T_g. Nous avons vu dans le premier chapitre que cette notion de température granulaire était mal définie dans la littérature. On propose donc ici d'étendre cette méthode d'inversion tout en sachant que la définition de température granulaire est floue. Une condition également nécessaire pour que la micro-rhéologie puisse être étendue aux suspensions granulaires vibrées est que le théorème de fluctuation-dissipation puisse être appliqué. Les travaux de D'Anna *et al.* [81, 82] ont montré que c'était effectivement le cas pour des nombres d'accélérations supérieurs à 1. Nous proposons d'appliquer cette méthode à l'exemple de la Fig.3.17. Rappelons qu'il s'agit d'une suspension de billes de verre de 200 μm immergées dans un fluide newtonien de viscosité $\eta_f = 300$ mPa.s, vibrée à une fréquence $f = 70$ Hz et une amplitude $A = 76$ μm. Le nombre d'accélération étant de 1.46, nous utiliserons les Eq.(3.29-3.32) pour extraire les modules effectifs locaux.

La figure 3.22 présente alors l'évolution des modules élastiques G' et visqueux G'' en fonction de la fréquence angulaire ω obtenus en rhéologie (Chapitre 2) pour ce système, et en DWS par la méthode d'inversion (Eqs.(3.29)-(3.32)). Les résultats obtenus permettent d'obtenir des informations sur le comportement rhéologique de notre système aux très hautes fréquences, entre 10^4 et 10^6 rad.s^{-1}. Quantitativement, les valeurs des modules obtenus en DWS sont beaucoup trop faibles (d'un facteur 10^4), par comparaison à celles obtenues en rhéologie. Cette erreur provient du numérateur de G^* (Eq.3.29). Ici, k_BT est l'énergie thermique brownienne. Or, dans notre cas, les particules bougent sous l'effet des vibrations qui reproduisent un mouvement macro-brownien. Il parait donc logique de remplacer k_BT par l'énergie mécanique de vibration E_v (Chapitre 2) définie par $E_v = 1/2mA^2(2\pi f)^2$ avec m la masse de l'échantillon. Dans le cas présent, la valeur de E_v ($\sim 10^{-5}$ J), à comparer avec

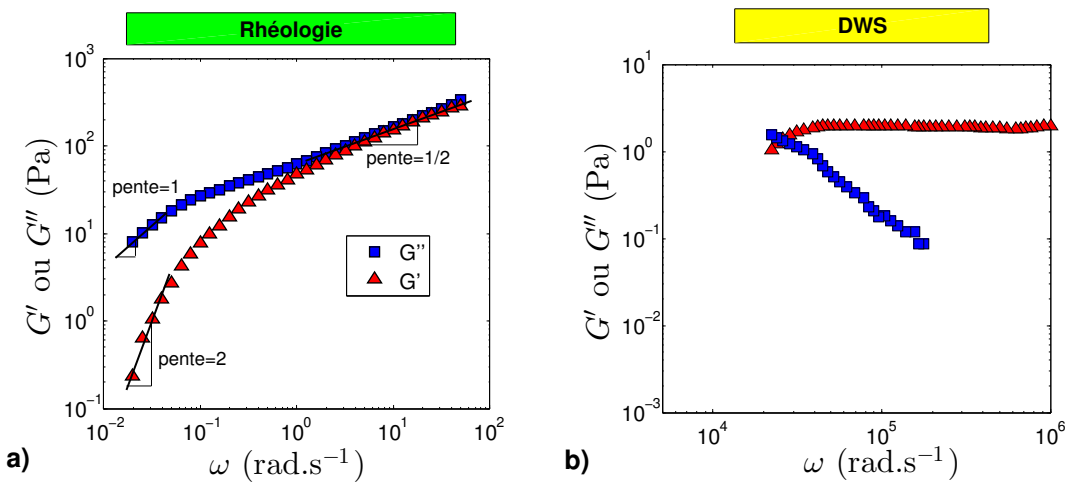


FIGURE 3.22 – a) Evolution des modules élastique (G') et visqueux (G'') en fonction de la fréquence angulaire (ω), obtenus par rhéométrie (Chapitre 2), pour un échantillon de billes de verre de 200 μm immergées dans un fluide newtonien de viscosité 300 mPa.s, vibré à $f = 70$ Hz, $A = 76$ μm. b) Evolution des modules élastique (G') et visqueux (G'') en fonction de la fréquence angulaire (ω), obtenus par l'application de la méthode d'inversion (Eq.3.29-3.32), pour le même système.

la valeur de k_BT (10^{-23} J), ne permet pas d'expliquer cet écart de 10^4. Par contre, il est raisonnable de penser que l'énergie qu'il faut considérer est proportionnelle à E_v. N'ayant pas d'information sur ce sujet, il est préférable de commenter qualitativement le comportement des modules élastique G' et visqueux G''. Pour $\omega > 10^4$ rad.s^{-1}, on constate que le module élastique est constant alors que le module visqueux chute. La suspension granulaire se comporte comme un solide élastique aux temps très courts, pour des temps inférieurs à 10^{-4} s.

En rhéologie, nous avions obtenu le comportement représenté en Fig.3.22(a). Dans la zone terminale, entre 0.01 et 1 rad.s^{-1}, G'' est supérieur à G', la suspension a un aspect liquide (comportement maxwellien) et le régime d'écoulement est visqueux. Pour des fréquences supérieures, dans la zone de transition vitreuse, les deux modules sont égaux et évoluent en $\omega^{1/2}$. La diffusion de lumière est une méthode complémentaire à la rhéométrie qui permet d'obtenir le comportement du système aux temps très courts, là où la rhéométrie échoue.

Les deux techniques présentées ici, diffusion de lumière et rhéométrie, ne permettent pas d'avoir l'évolution des modules viscoélastiques dans la zone intermédiaire, entre 10^2 et 10^4 rad.s^{-1}. Nous avons vu que la diffusion de lumière mutlispeckle était parfaitement adaptée pour sonder le comportement de notre système aux temps longs. L'idée serait d'associer la diffusion de lumière traditionnelle (DWS) et multispeckle (MSDWS) dans un même montage expérimental pour sonder la dynamique du système

sur la gamme complète de fréquences angulaires.

Résumé :

- La diffusion de lumière permet de sonder la dynamique rapide aux temps courts (entre 10^{-3}-10^{-2} s) de la suspension granulaire modèle. Le temps caractéristique τ_{DWS} extrait par cette technique est un temps de collision moyen entre particules. Le comportement observé est complètement différent de celui obtenu aux temps longs : il ne dépend pas de la viscosité du fluide et le paramètre pertinent est le nombre d'accélération Γ, tel que $\tau_{DWS} \propto \Gamma^{-1}$. En effet, les forces interparticulaires qui contrôlent la dynamique du système sont de nature collisionnelle alors qu'elles sont de nature lubrifiée aux temps longs (entre 10^{-1}-10^{3} s).
- La micro-rhéologie donne des informations supplémentaires sur le comportement viscoélastique des suspensions granulaires vibrées. Aux temps très courts (inférieurs à 10^{-4} s), leur comportement est similaire à celui d'un solide élastique alors qu'aux temps longs le système s'écoule comme un fluide visqueux.

+

Chapitre 4

Ouverture : Rhéométrie à chute de bille par Imagerie par Résonance Magnétique (IRM)

Sommaire

4.1 Introduction . . . 178

4.2 Théorie de l'Imagerie par Résonance Magnétique . . . 179

4.2.1 Interaction noyau-champ magnétique . . . 179

4.2.2 Principe de la Résonance Magnétique Nucléaire . . . 180

4.2.3 Principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique . . . 184

4.3 Matériel et méthodes . . . 187

4.4 Équation du mouvement . . . 190

4.4.1 Équation générale . . . 190

4.4.2 Cas particuliers . . . 192

4.5 Résultats et discussion . . . 193

4.5.1 Dynamique du système . . . 194

4.5.2 Évolution des paramètres α et K en fonction de la viscosité du fluide interstitiel et des paramètres de vibrations . . . 196

4.5.3 Conclusion . . . 201

4.1 Introduction

Dans le Chapitre 2, nous nous sommes intéressés au comportement macroscopique rhéologique d'une suspension granulaire modèle. La viscosité d'un tel matériau diminue quand l'énergie fournie au système via les vibrations s'intensifie ou encore quand la viscosité du fluide interstitiel augmente (pour des nombres de Reynolds particulaire inférieurs à 1). Les expériences de diffusion de lumière multispeckle décrites dans le Chapitre 3 ont permis de montrer que ce comportement était lié à une cinétique de réarrangement des billes aux temps longs, et plus précisément à des mécanismes de sortie de cage. Mais comment vérifier cette hypothèse ? Est il possible d'avoir accès à des images de la microstructure ? Et si oui, peut-on suivre l'évolution de cette microstructure sous vibrations ? Pour tenter de répondre à ces questions, nous nous sommes tournés vers l'utilisation de grands instruments, notamment l'Imagerie par Résonnance Magnétique (IRM) (*Spectromètre Bruker Avance III 600*, Lemta Nancy).

L'IRM est une technique non intrusive qui permet d'obtenir des images 2D ou 3D de l'intérieur d'un système. Elle est fondée sur la principe de la résonance magnétique nucléaire (RMN) qui consiste à analyser la réponse des noyaux atomiques soumis à un champ magnétique extérieur et déstabilisés par une onde électromagnétique à fréquence radio. L'appareil utilisé permet de détecter les protons d'hydrogène contenus dans la suspension granulaire, autrement dit l'IRM permet de visualiser l'eau contenue dans notre système. Du fait de la faible résolution temporelle de l'IRM, il est difficile de suivre la dynamique de nos billes de verre au cours du temps par traitement d'images. Pour contrer cette difficulté, nous proposons une expérience tout à fait différente. L'idée est de plonger une bille suffisamment grosse, une bille en plomb de 3.6 mm de diamètre, dans une suspension granulaire modèle constituée de billes de verre de 530 μm de diamètre et de suivre sa position au cours du temps grâce à l'IRM. La bille en plomb, de masse volumique plus importante que celle des billes de verre, coule sous l'effet de son poids et des vibrations. A l'instar d'un viscosimètre à chute de bille, couramment utilisé en mécanique des fluides pour mesurer une viscosité, la connaissance de la position de cette bille en plomb permet de sonder la viscosité de la suspension. L'IRM est un très bon outil pour repérer la bille dans le volume de ce milieu opaque. Ce type d'expérience qui consiste à caractériser l'immersion d'un objet dans un milieu granulaire dense vibré a déjà été mené dans le cas sec [174, 191, 192] mais aucune étude n'a été menée, à notre connaissance, sur l'influence de la viscosité du fluide interstitiel.

Ce chapitre est donc une ouverture sur les résultats précédemment obtenus sur le rhéomètre à poudre ou par diffusion de lumière. Les expériences présentées ici méritent d'être approfondies dans le futur.

4.2 Théorie de l'Imagerie par Résonance Magnétique

Nous proposons ici de donner les grands principes de base de la Résonance Magnétique Nucléaire et de l'Imagerie par résonance magnétique. Les informations sont principalement extraites des références [193, 194, 195].

4.2.1 Interaction noyau-champ magnétique

Le noyau d'un atome est caractérisé par une masse, une charge définie par le nombre de protons et un spin nucléaire I. Le spin est une caractéristique quantique intrinsèque au noyau, sa valeur est un nombre entier ou demi-entier noté I. Le mouvement de spin, qui désigne le mouvement de rotation sur lui-même du noyau chargé électriquement, génère un champ magnétique associé à un moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ de norme $\mu = \frac{h}{2\pi}\gamma I$ avec h la constante de Planck, γ le rapport gyromagnétique.

Pour une population de noyaux, on définit l'aimantation magnétique par $\mathbf{M} = \frac{1}{V}\sum_i \boldsymbol{\mu}$ avec $\sum_i$ la somme sur les noyaux i contenus dans le volume V. La RMN exploite cette aimantation pour extraire les propriétés du système étudié.

Les noyaux avec un nombre de spin nul ne peuvent donc pas être utilisés en IRM. Le noyau d'hydrogène ^1H, de spin $I = 1/2$, est sans aucun doute le noyau le plus couramment utilisé, par son abondance naturelle et par la norme élevée de son moment magnétique. Par la suite, nous ne considérons que ce type de protons.

En l'absence de champ magnétique extérieur, les moments magnétiques μ des noyaux d'hydrogène ont une orientation aléatoire (Fig.4.1(a)). L'aimantation magnétique $\mathbf{M}$ de l'ensemble est nulle. Tous les moments magnétiques sont distribués uniformément sur un même niveau d'énergie.

En présence d'un champ magnétique extérieur $\mathbf{B_0}$, les moments magnétiques de chaque noyau s'orientent et forment un angle θ constant avec $\mathbf{B_0}$ (Fig.4.1(b)). Ils peuvent être dirigés dans le même sens (« parallèle ») que $\mathbf{B_0}$, soit dans le sens contraire (« antiparallèle ») (Fig.4.1(b)). La majorité des moments étant parallèles à $\mathbf{B_0}$, l'aimantation magnétique $\mathbf{M}$ est dirigée suivant $\mathbf{B_0}$. Les moments magnétiques sont également animés d'un mouvement de précession autour de l'axe de $\mathbf{B_0}$, à l'instar

d'une toupie autour de la verticale, avec une pulsation propre $\omega_0 = \gamma|\mathbf{B_0}|$. La fréquence associée, la fréquence de Larmor, est noté $\nu_0 = \omega_0/2\pi$. L'aimantation magnétique tourne également autour de $\mathbf{B_0}$ à la fréquence ν_0.

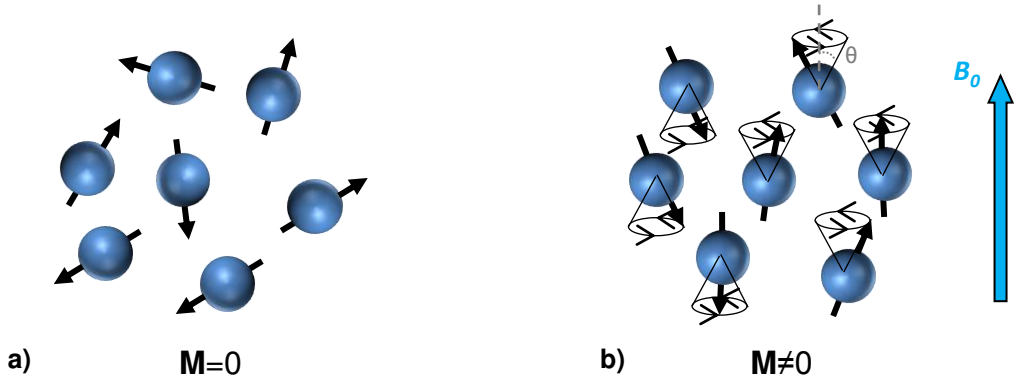


FIGURE 4.1 – Orientation des spins en l'absence de champ magnétique extérieur (a) et en présence d'un champ magnétique extérieur $\mathbf{B_0}$ (b).

4.2.2 Principe de la Résonance Magnétique Nucléaire

Le principe d'une mesure de RMN se déroule en trois étapes, à savoir la polarisation, la résonance et la relaxation (Fig.4.2).

La polarisation (Fig.4.2(a))

On applique un champ magnétique extérieur $\mathbf{B_0}$ à l'échantillon. En RMN, on cherche à mesurer l'aimantation $\mathbf{M}$, qui est la signature de l'échantillon. Cependant, à l'équilibre, l'aimantation $\mathbf{M}$ est noyée dans le champ $\mathbf{B_0}$ qui a une amplitude beaucoup plus importante. On peut décomposer $\mathbf{M}$ en une composante longitudinale (suivant $\mathbf{B_0}$) qui sera notée $\mathbf{M_z}$ et une composante transversale (perpendiculaire à $\mathbf{B_0}$) notée $\mathbf{M_{xy}}$. A cette étape, on a $\mathbf{M_z} = \mathbf{M}$ et $\mathbf{M_{xy}} = 0$. Pour pouvoir distinguer $\mathbf{M}$ de $\mathbf{B_0}$, il faut écarter $\mathbf{M}$ de sa position d'équilibre en appliquant un second champ magnétique $\mathbf{B_1}$.

La résonance (Fig.4.2(b))

La mise hors équilibre de $\mathbf{M}$ est réalisée en appliquant une impulsion de champ radio-fréquence (RF) $\mathbf{B_1}$ polarisée perpendiculairement à $\mathbf{B_0}$. Elle est généralement produite par une bobine parcourue par un courant ou par une antenne radio-fréquence. Ce champ est une onde électromagnétique qui doit osciller à la même fréquence que la fréquence de Larmor ν_0, de telle sorte que les noyaux excités soient

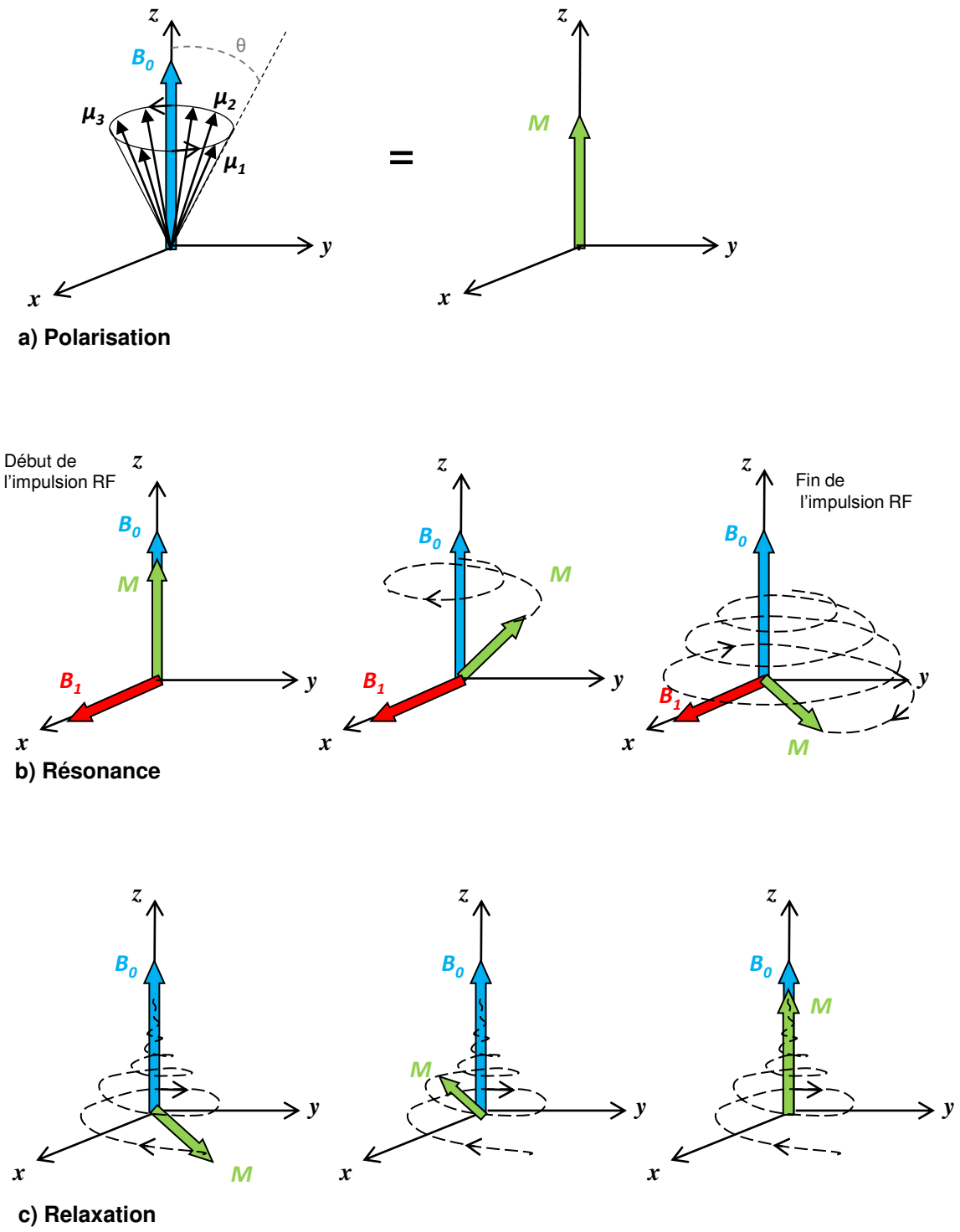


FIGURE 4.2 – Les trois étapes d'une expérience de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) : la polarisation (a), la résonance (b) et la relaxation (c).

en résonance. Lors de cette étape, les moments magnétiques $\boldsymbol{\mu}$ basculent en position perpendiculaire à $\mathbf{B_0}$ et se mettent en phase pour leur mouvement de précession. Cette phase de bascule implique alors une diminution de la composante $\mathbf{M_z}$ mais une apparition de la composante $\mathbf{M_{xy}}$. On attribue $\mathbf{M_z}$ à la différence de population entre spins « parallèles » et « antiparallèles » et $\mathbf{M_{xy}}$ à la mise en phase plus ou moins complète des spins avec l'excitation RF. L'extrémité de l'aimantation $\mathbf{M}$ décrit alors une hélice inscrite sur la surface d'une sphère. D'un point de vue mathématique, il est parfois plus aisé de se placer dans un repère tournant à la fréquence de Larmor, ce qui permet de ne plus voir le mouvement de précession de $\mathbf{M}$. Expérimentalement, on applique généralement $\mathbf{B_1}$ pendant une durée finie T de telle sorte que $\mathbf{M}$ bascule de 90 °. Ceci provoque l'annulation de la composante $\mathbf{M_z}$ du fait d'une égalisation des populations « parallèles » et « antiparallèles ». Par contre, la composante $\mathbf{M_{xy}}$ n'est pas nulle car les spins sont en phase.

La relaxation (Fig.4.2(c))

A la fin de l'impulsion $\mathbf{B_1}$, le système est hors équilibre et l'aimantation $\mathbf{M}$ tend à retrouver sa position initiale en présence de $\mathbf{B_0}$ uniquement. Ce retour à l'équilibre, appelé relaxation, s'accompagne d'une émission d'énergie sous la forme d'une onde radio-fréquence qui constitue le signal RMN détectable. La composante $\mathbf{M_z}$ est alors complètement récupérée (relaxation longitudinale) alors que la composante $\mathbf{M_{xy}}$ disparait (relaxation transversale).

La récupération de la composante longitudinale $\mathbf{M_z}$ correspond à un retour dans l'état parallèle des spins excités. Celle-ci s'effectue selon une exponentielle croissante définie par :

$$|\mathbf{M_z}|(t) = M_0\,[1 - \exp(-t/T_1)] \tag{4.1}$$

Avec M_0 l'aimantation à l'équilibre et T_1 le temps caractéristique de relaxation longitudinale. T_1 correspond au temps nécessaire pour que l'aimantation longitudinale retourne à 63 % de sa valeur finale M_0. Au bout de $5T_1$, on peut considérer que la récupération est totale. Sa valeur dépend des interactions entre les noyaux et le milieu environnant d'où le nom de temps spin-réseau.

La disparition de la composante transversale $\mathbf{M_{xy}}$ est quant à elle attribuée au déphasage des spins. Cette chute est également exponentielle, du type :

$$|\mathbf{M_{xy}}|(t) = M_0 \exp(-t/T_2) \tag{4.2}$$

Avec T_2 le temps caractéristique de relaxation transversale. Il correspond au temps mis par $\mathbf{M_{xy}}$ pour revenir à 37 % de sa valeur maximale. Sa valeur dépend des interactions entre les noyaux d'où le nom de temps spin-spin.

Les temps T_1 (temps spin-réseau) et T_2 (temps spin-spin) sont distincts l'un de l'autre. Dans de l'eau pure, $T_1 = T_2 = 3$ s. Dans le cas de nos suspensions granulaires $T_1 \approx 140$ ms, $T_2 \approx 10$ ms.

Traitement du signal RMN

Le signal RMN, issu de la relaxation de l'aimantation magnétique, est mesuré par le même dispositif d'émission de l'impulsion RF. Les variations de l'aimantation transversale $\mathbf{M_{xy}}$ peuvent être enregistrées sous la forme d'un signal radio fréquence. Le signal recueilli, appelé signal de précession libre (Free Induction Decay en anglais), prend la forme d'une sinusoïde de fréquence constante, amortie par une exponentielle de temps décroissante en T_2 (Fig.4.3(a)). Les hétérogénéités du champ magnétique entrainent une perte de signal caractérisée par un temps T_2^* inférieur à T_2. L'enveloppe du signal RMN prend alors la forme d'une exponentielle décroissante en T_2^*. Nous verrons par la suite qu'une impulsion à 180 ° permet de remédier à ces hétérogénéités.

Le signal RMN représenté en Fig.4.3(a) est valable dans le cas d'un proton isolé. Pour un nombre de noyaux plus important, la forme du signal devient plus compliquée et on obtient une superposition de sinusoïdes. Afin de pouvoir extraire les informations d'un tel signal, on réalisé une transformée de Fourier du signal. Le signal récupéré (FID) devient une raie de fréquence ν_0 (Fig.4.3(b)). La surface sous cette raie dépend de M_0 ce qui permet de connaitre par exemple la concentration de noyaux d'hydrogène dans l'échantillon.

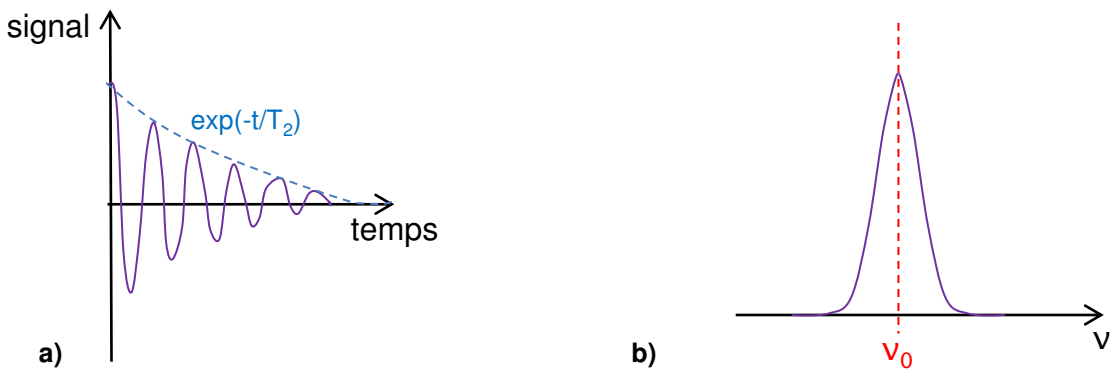


FIGURE 4.3 – a) Signal RMN obtenu pour un noyau isolé, sous forme de sinusoïde amortie en T_2. b) Spectre RMN obtenu après transformée de Fourier du signal RMN, avec une raie de résonance de fréquence ν_0.

4.2.3 Principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique

L'Imagerie par Résonance Magnétique utilise les mêmes principes que la Résonance Magnétique Nucléaire en y ajoutant une information spatiale. En effet, les signaux RMN recueillis doivent correspondre à des positions différentes de l'échantillon. Pour réaliser ce « codage spatial » on a recours à différents champs magnétiques.

Localisation spatiale

Sous l'effet d'un champ statique homogène $\mathbf{B_0}$, les spins des noyaux d'hydrogène constituant le volume d'échantillon résonnent tous à la même fréquence ν_0 (Fig.4.4(a)). Le signal RMN n'est alors composé que d'une seule raie de résonance et il est impossible de distinguer ce qui est issu d'un endroit ou d'un autre de l'échantillon. Or, pour faire de l'imagerie, on a justement besoin de différencier spatialement les signaux RMN, c'est ce qu'on appelle la localisation spatiale. Le but est de faire varier l'intensité du champ statique $\mathbf{B_0}$ en lui superposant un gradient de champ magnétique, généré par des bobines de gradient. Dans l'exemple de la figure 4.4(b), on considère un gradient uniforme dans la direction $\mathbf{e_y}$, noté $\mathbf{G}y$, de telle sorte que l'échantillon est soumis à un champ magnétique total de la forme $\mathbf{B_0} + \mathbf{G}y$. Le spectre RMN présente alors différentes raies de résonance dont les fréquences dépendent de la position considérée. En effet, les spins des noyaux d'hydrogène situés en y_1 résonneront à une fréquence de Larmor $\nu_1 = \gamma(B_0 + Gy_1)/2\pi$, ceux en y_2 à $\nu_2 = \gamma(B_0 + Gy_2)/2\pi$, et ainsi de suite. L'analyse du spectre permet donc de remonter à des informations locales.

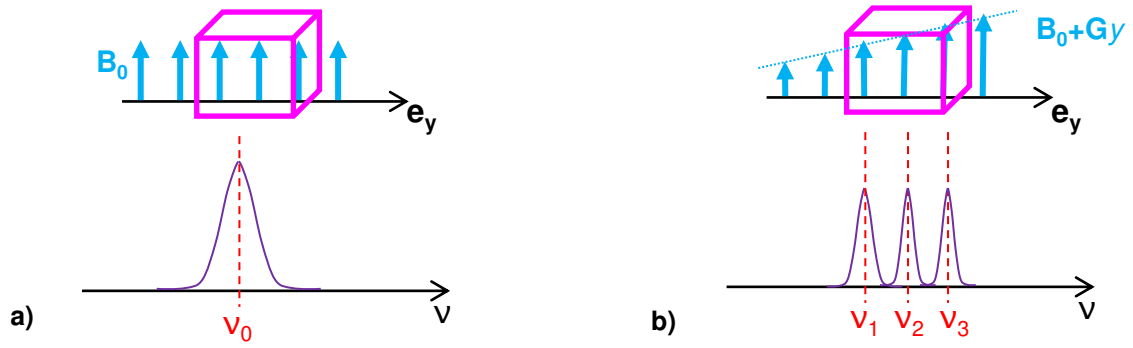


FIGURE 4.4 – a) Spectre RMN obtenu avec un champ magnétique constant $\mathbf{B_0}$. b) Spectre RMN obtenu avec un gradient de champ magnétique dans la direction $\mathbf{e_y}$, i.e. $\mathbf{B_0} + \mathbf{G}y$ (principe de la localisation spatiale).

Pour pouvoir réaliser une image bidimensionnelle, on a recours à trois types de gradients de champ magnétique :

- un gradient de sélection de coupe GSC qui permet de sélectionner une tranche de l'échantillon
- un gradient de codage par la phase GCP et un gradient de codage par la fréquence GCF qui permettent de coder la positon de chaque point verticalement et horizontalement à l'intérieur de cette coupe.

Ces trois gradients ont des propriétés identiques mais ont des directions différentes et sont appliqués à des instants différents. Le gradient de sélection de coupe GSC est appliqué dans une direction perpendiculaire au plan de coupe. Il s'additionne au champ statique $\mathbf{B_0}$. Comme énoncé précédemment, ce gradient de champ modifie les fréquences de précession de Larmor des protons en fonction de leur position. On applique alors simultanément l'onde RF à une fréquence égale à la fréquence de Larmor des protons du plan de coupe qui est exploitée. Par conséquent, seule l'aimantation des spins appartenant à la coupe est basculée, les noyaux situés en dehors de ce plan n'étant pas excités par cette onde RF.

Les protons de ce plan de coupe sont ensuite stimulés par les deux autres gradients pour coder leur position. Le gradient de codage par la phase GCP permet de différencier les lignes de la matrice image. Il est appliqué dans une direction perpendiculaire à GSC. GCP modifie les fréquences de précession des spins dans la direction selon laquelle il est appliqué, ce qui induit un décalage des phases. Pour obtenir une image correcte, il est nécessaire de réaliser plusieurs fois l'acquisition avec des décalages de phase différents. Ce gradient s'applique pendant un temps limité.

Le gradient de codage par la fréquence GCF permet de différencier les colonnes de la matrice image. Il est appliqué selon la dernière direction. Ce gradient est appliqué en même temps que le recueil du signal, c'est pour cette raison qu'on l'appelle aussi gradient de lecture. Il modifie également les fréquences de précession des spins dans la direction selon laquelle il est appliqué.

Séquence d'écho de spin

Il existe différentes combinaisons, appelées séquences, pour appliquer l'onde RF et les gradients GSC, GCP et GCF. Le choix d'une séquence dépend de la vitesse d'acquisition, de la qualité de l'image ainsi que du rapport signal/bruit. Les séquences les plus utilisées en IRM sont les séquences d'écho de spin et d'écho de gradient. N'ayant employé que la séquence d'écho de spin, nous ne présenterons que celle-ci. Elle est constituée de l'enchaînement suivant (Fig.4.5) :

- une impulsion RF à 90 °, dite d'excitation, en présence du gradient de sélection de coupe GSC, qui permet de faire basculer l'aimantation
- une période de déphasage dans le plan transverse des protons pendant un temps $TE/2$, avec TE

le temps d'écho, au cours duquel on applique le gradient de codage de phase GCP

- une seconde impulsion RF à 180 °, dite d'inversion, qui permet de s'affranchir des inhomogénéités locales du champ magnétique et d'obtenir un signal en T_2 (et non en T_2^*)
- un rephasage pendant un temps $TE/2$
- la lecture du signal (lecture de l'écho de spin) avec l'application du gradient de codage par la fréquence GCF.

Nous allons voir que cette séquence est répétée plusieurs fois, pendant un temps de répétition TR, pour former l'image.

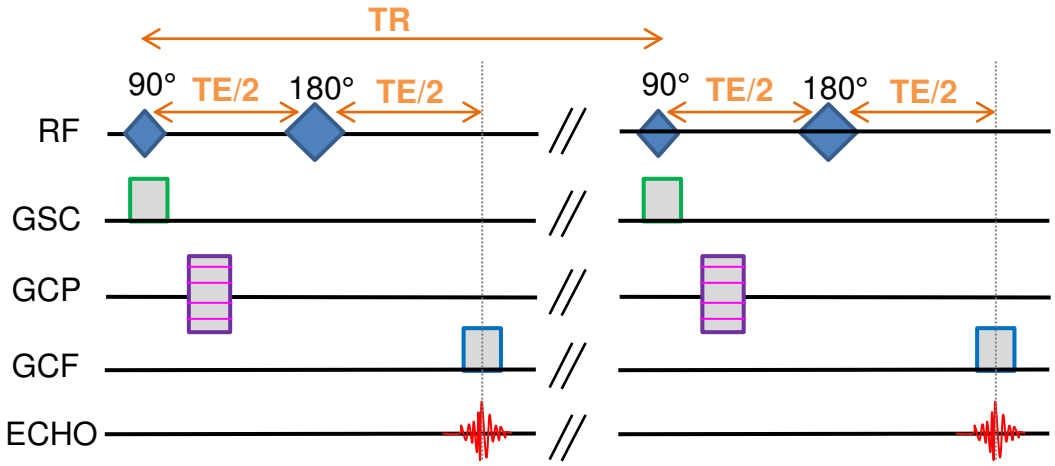


FIGURE 4.5 – Séquence d'écho de spin.

Formation de l'image

Le signal RMN est enregistré après les différentes étapes de la séquence employée. Le signal brut est stocké dans un tableau ou matrice appelé espace K (ou plan de Fourier ou espace fréquentiel). Dans le cas d'une séquence d'écho de spin, ce remplissage s'effectue de la façon suivante. Le gradient GSP sélectionne la coupe où cet espace K va être rempli. Pendant le temps de répétition TR, on sélectionne une ligne de l'espace K à l'aide du gradient de codage par la phase GCP. Le remplissage de cette ligne est effectué via le gradient de codage par la fréquence GCF. Le temps TR correspond donc au temps nécessaire pour remplir une ligne. Cet enchainement est répété autant de fois qu'il y a de lignes dans la matrice image. L'image réelle est obtenue en effectuant une transformée de Fourier 2D inverse aux données de l'espace K.

4.3 Matériel et méthodes

Comme énoncé en introduction, le principe de l'expérience est analogue à un viscosimètre à chute de bille. Une bille en plomb de 3.6 mm est immergée dans la suspension granulaire constituée de billes de verre de 530 μm. L'échantillon est placé dans un tube cylindrique de diamètre intérieur 2 cm, ce qui permet de limiter les effets de bord. Sous l'effet des vibrations et de son poids, la bille se déplace d'une certaine profondeur dans le milieu. En analysant l'évolution de son déplacement au cours du temps, il est possible de remonter aux propriétés physiques de la suspension granulaire, comme sa viscosité, en fonction de la viscosité du fluide interstitiel et de l'amplitude de vibration à fréquence de vibration fixée. Nous avons recours à l'IRM pour mesurer de façon précise le déplacement de la bille dans ce milieu opaque. Cette partie est dédiée à la description du procédé expérimental.

Dispositif expérimental

L'appareil IRM utilisé est un spectromètre Bruker Avance III 600 (Fig.4.6(a)). Il est équipé d'un aimant supraconducteur vertical, de 89 mm d'ouverture, capable de générer un champ magnétique statique B_0 de 14.1 T, soit une fréquence de résonance des protons $\nu = \gamma B_0/2\pi = 600$ MHz. La sonde radio fréquence (RF) (MicWB40, Bruker) (Fig.4.6(b)) est constituée d'une bobine à gradient, de type résonateur en forme de cage à oiseaux en quadrature avec un diamètre d'ouverture de 2.5 cm. La sonde joue le rôle d'émetteur-récepteur, en plus d'accueillir l'échantillon. En effet, elle émet les ondes RF pour exciter les protons et elle est capable de mesurer le signal RMN émis par la résonance de l'échantillon. Les bobines de gradient, combinées à la sonde, permettent de générer les gradients de champ magnétique (GSC, GCP et GCF) nécessaires à l'imagerie. Leur diamètre d'ouverture est de 40 mm et elles peuvent délivrer des gradients de champ jusqu'à 1.5 T.m^{-1}. Le système est refroidi par un dispositif de refroidisseur d'air. Le traitement des données et le pilotage de l'appareil se fait sous Linux avec le logiciel Paravision 5.1.

L'échantillon est placé dans une cuve cylindrique en plexiglas de 2 cm diamètre, 1 mm d'épaisseur et de 6 cm de hauteur, pour être en adéquation avec les dimensions de la sonde. La cuve est reliée au pot vibrant via une tige en plexiglas formée de différents tronçons afin de faciliter la mise en place de l'échantillon dans l'IRM. Les vibrations sont générées par un mini vibreur électromagnétique, identique à celui utilisé en rhéologie ou en diffusion de lumière (type 4880, Brüel et Kjær). La fréquence et l'amplitude des vibrations sont imposées via un appareil de contrôle (*Dactron Comet Usb*, Brüel et

Kjær) relié à un amplificateur et à un accéléromètre attaché à la cellule. La fréquence est fixée à 80 Hz, deux amplitudes de vibrations sont testées ($A = 26.5$ μm et 14 μm).

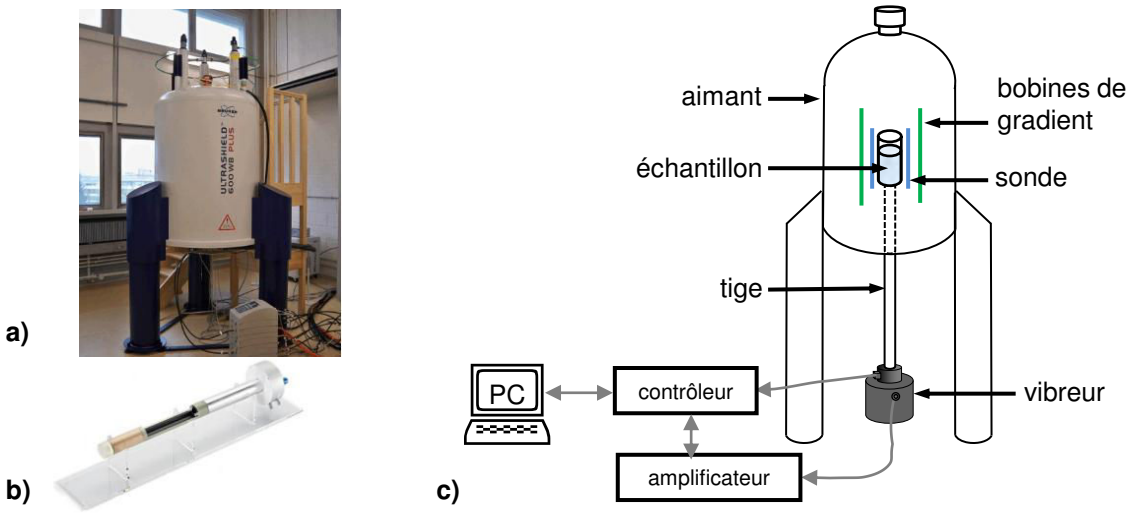


FIGURE 4.6 – a) Photo du spectromètre Bruker Avance III 600 (Institut Jean Barriol). b) Sonde radio fréquence (RF) (MicWB40, Bruker). c) Schéma du dispositif expérimental.

Matériel

L'échantillon est une suspension granulaire modèle constituée de billes de verre sphériques et monodisperses de diamètre $d = 530 \pm 30$ μm (*Glass Microspheres*, Whitehous Scientific Ltd), de masse volumique $\rho_p = 2400$ kg.m^{-3}. Le fluide interstitiel est constitué d'un mélange Emkarox-eau en différentes proportions pour obtenir différentes valeurs de viscosité, soit $\eta_f = 176$, 476 et 661 mPa.s. Leur masse volumique (ρ_f) est proche de celle de l'eau (Chapitre 2, Tableau 2.1). Les billes sont immergées dans le fluide avec une fraction volumique globale ϕ_g de 0.61 (Eq.(2.7)). La masse volumique de la suspension billes+fluide est définie par $\rho_s = \rho_p\phi_g + \rho_f(1 - \phi_g) \approx 1866$ kg.m^{-3}. Comme énoncé précédemment, on immerge une bille en plomb de 3.6 mm de diamètre, de masse volumique $\rho_{pb} = 11350$ kg.m^{-3} nettement supérieure à celle des billes de verre pour qu'elle puisse s'enfoncer dans le milieu sous l'effet de son poids et des vibrations. On essaye de déposer la bille en plomb au centre de la surface de l'empilement granulaire pour éviter les effets de bord.

Procédure expérimentale

La figure 4.7 présente les images 2D obtenues avant et après vibration par IRM pour notre suspension granulaire réalisée avec une viscosité de fluide $\eta_f = 661$ mPa.s, vibrée à $f = 80$ Hz, $A = 26.5$ μm.

On voit clairement que la bille en plomb s'est déplacée sous vibrations. Rappelons que nous voulons suivre la position de la bille au cours du temps, ce qui nécessite de prendre des images suffisamment rapprochées. Un moyen simple et efficace est de faire une acquisition 1D (Fig.4.8(a)) selon la profondeur à la place des images 2D classiques afin de réduire de façon considérable le temps d'acquisition. Cette technique permet donc de suivre la dynamique du système, de façon quasi continue. La séquence IRM mise en œuvre est une séquence d'écho de spin, avec un gradient de coupe et un gradient de lecture. Le gradient de phase n'est pas nécessaire car on code la position de la bille selon une dimension seulement.

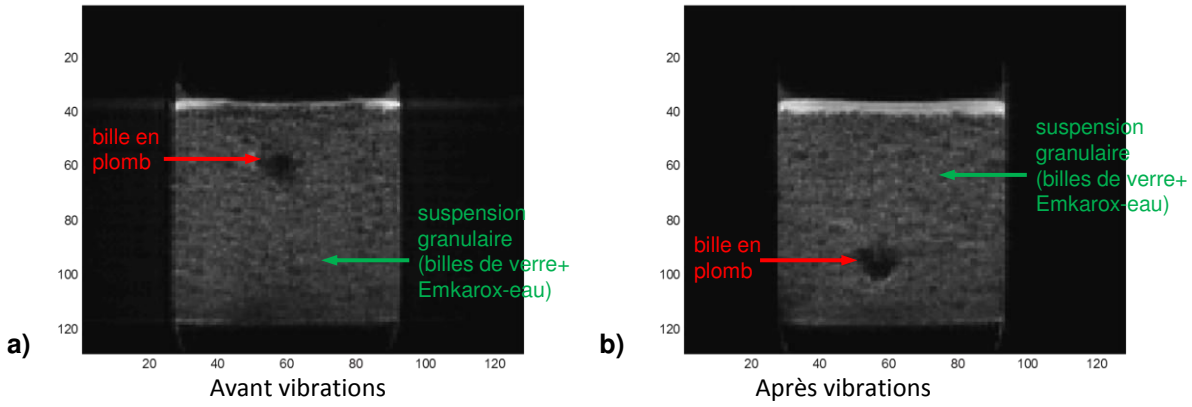


FIGURE 4.7 – Image bidimensionnelle acquise par IRM de la bille en plomb immergée dans la suspension granulaire a) avant vibrations et b) après vibrations (f = 80 Hz, A = 26.5 μm). La suspension granulaire est composée de billes de verre de 530 μm immergées dans un fluide de viscosité η_f = 661 mPa.s. La bille en plomb fait 3.6 mm de diamètre.

Les paramètres sont les suivants : TR = 5 s, TE = 6.9 ms, FOV (champ de vue)= 5 cm, nombre de points dans la matrice image= 512. La figure 4.8(b) montre le signal RMN obtenu pour l'exemple de la figure 4.7, à t = 55 s. L'intensité de chaque pixel est une valeur moyenne de la densité d'eau contenue dans le système obtenue en intégrant le signal dans le plan horizontal à une hauteur donnée. Dans le plan horizontal contenant la grosse bille, la densité d'eau étant plus faible, l'intensité du signal le sera également. On peut donc suivre la position de la bille en plomb au cours du temps en repérant le minimum de l'intensité du signal au cours du temps (Fig.4.9(a)). L'analyse de l'évolution temporelle de sa position va nous permettre de caractériser notre suspension granulaire modèle composée de billes de verre et du mélange Emkarox-eau.

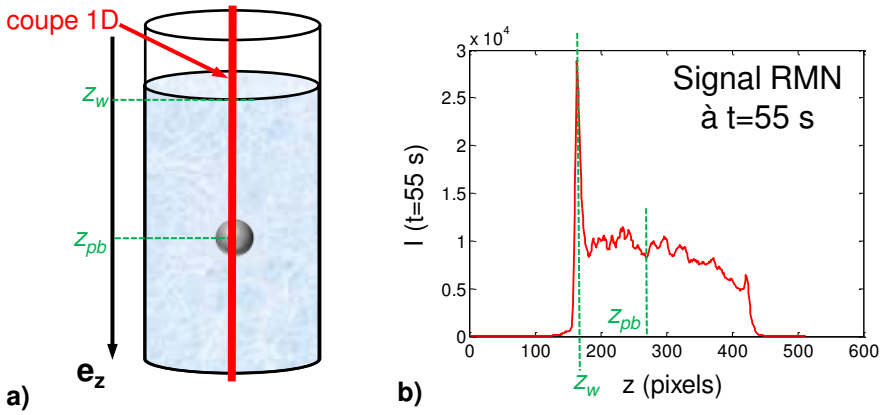


FIGURE 4.8 – a) Principe de l'acquisition 1D. b) Signal RMN, intensité en fonction de la profondeur, à $t = 55$ s, pour l'exemple de la figure 4.7. Les profondeurs z_W et z_{pb} désignent respectivement la position de la surface libre de l'échantillon et la position de la bille en plomb.

4.4 Équation du mouvement

Pour l'instant, nous avons montré qu'il était possible, par IRM, de déterminer la position de la bille en plomb dans notre milieu au cours du temps. Maintenant, on désire exploiter ces données pour en extraire la viscosité de la suspension modèle ainsi que d'autres paramètres comme le coefficient de friction entre la bille en plomb et les billes en verre, en fonction de la viscosité du fluide et de l'amplitude de vibration. Pour se faire, il est nécessaire d'établir l'équation du mouvement de cette bille en plomb.

4.4.1 Équation générale

Soit la bille en plomb de masse m_{pb}, de rayon R_{pb}, de volume V_{pb}, de masse volumique ρ_{pb}. Cette bille est immergée dans une suspension granulaire qui présente une viscosité η_s sous vibrations, de masse volumique ρ_s. La position instantanée z du centre de la bille en plomb est repérée par l'axe vertical descendant $\mathbf{e_z}$ (position notée z_{pb} en Fig.4.8(a)). La bille est soumise :

- au poids : $\mathbf{P} = m_{pb} g \mathbf{e_z} = \rho_{pb} V_{pb} g \mathbf{e_z}$, avec g la constante gravitationnelle
- à la poussée d'Archimède : $\mathbf{P_A} = -\rho_s V_{pb} g \mathbf{e_z}$
- à une force de frottement fluide : $\mathbf{F_v} = -\alpha \dot{z} \mathbf{e_z}$, avec α le coefficient de frottement fluide
- à une force de friction solide : $\mathbf{F_f} = -K z \mathbf{e_z}$, avec K le coefficient de frottement solide.

En considérant que le frottement fluide est régi par une loi de Stokes, le coefficient α est égal à $6\pi\eta_s R_{pb}$, avec η_s la viscosité de la suspension granulaire dans laquelle baigne la bille en plomb.

Connaissant α, on peut donc à priori déterminer la viscosité de la suspension sous vibrations η_s.

Le frottement sec est dû à la friction entre la bille en plomb et les billes en verre. Nous avons vu dans les chapitres précédents que la contrainte frictionnelle σ_f était reliée à la pression granulaire P_g par $\sigma_f = \mu P_g$ avec μ le coefficient de friction inter-grain. La force de frottement qui intervient ici s'exprime alors $F_f = \sigma_f 4\pi R_{pb}^2 = 4\pi\mu P_g R_{pb}^2$ avec $P_g = \Delta\rho\phi g z = (\rho_{pb} - \rho_s)\phi g z$. On en déduit que le coefficient $K = F_f/z$ est de l'ordre de $4\pi\mu\Delta\rho\phi g R_{pb}^2$. μ représente le coefficient de friction effectif entre la bille en plomb et les billes de verre.

Le mouvement de la bille est alors régi par l'équation suivante (projection de la seconde loi de Newton selon $\mathbf{e_z}$) :

$$\rho_{pb} V_{pb} \ddot{z} = (\rho_{pb} - \rho_s) V_{pb} g - \alpha \dot{z} - K z \tag{4.3}$$

$$\Longleftrightarrow \ddot{z} = \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) g - \frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}} \dot{z} - \frac{K}{\rho_{pb} V_{pb}} z \tag{4.4}$$

$$\Longleftrightarrow \ddot{z} + \frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}} \dot{z} + \frac{K}{\rho_{pb} V_{pb}} z = \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) g \tag{4.5}$$

Recherche des solutions générales z_H de l'équation homogène $\ddot{z} + \frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}} \dot{z} + \frac{K}{\rho_{pb} V_{pb}} z = 0$ (H)

Le discriminant de (H) est donné par $\Delta = \left(\frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}}\right)^2 \left(1 - \frac{4K\rho_{pb} V_{pb}}{\alpha^2}\right)$. En estimant les ordres de grandeur suivants : $\alpha \sim 10^2$ kg.s^{-1} ($\eta_s \sim 10^{\ 3}$ Pa.s, $R_{pb} \sim 10^{\ -3}$ m), $K \sim 10^{-1}$ kg.s^{-2} ($\Delta\rho \sim 10^4$ kg.m^{-3}, $g \sim 10$ m.s^{-2}, $R_{pb} \sim 10^{-3}$ m), on a $\alpha^2 >> 4K\rho_{pb} V_{pb}$, ce qui implique $\Delta > 0$. L'Eq.(H) admet deux racines réelles, notée Γ_1 et Γ_2, telles que :

$$\Gamma_1 = -\frac{\alpha}{2\rho_{pb} V_{pb}} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{4K\rho_{pb} V_{pb}}{\alpha^2}}\right) \tag{4.6}$$

$$\Gamma_2 = -\frac{\alpha}{2\rho_{pb} V_{pb}} \left(1 + \sqrt{1 - \frac{4K\rho_{pb} V_{pb}}{\alpha^2}}\right) \tag{4.7}$$

Avec $\Gamma_2 < \Gamma_1 < 0$.

La solution générale de l'équation homogène est alors donnée par :

$$z_H(t) = C_1 \exp(\Gamma_1 t) + C_2 \exp(\Gamma_2 t) \tag{4.8}$$

Avec C_1 et C_2 des constantes.

Recherche d'une solution particulière

Le second membre de l'Eq.(4.5) étant constant, on recherche une solution particulière du type $z_p = C_3$ avec C_3 une constante. Par identification, on obtient :

$$z_p = \frac{\rho_{pb} V_{pb} g}{K} \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) \tag{4.9}$$

Solution générale

En appliquant le principe de superposition des solutions, la solution générale de l'Eq.(4.5) est donnée par $z(t) = z_H(t) + z_p$, soit :

$$z(t) = C_1 \exp(\Gamma_1 t) + C_2 \exp(\Gamma_2 t) + \frac{\rho_{pb} V_{pb} g}{K} \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) \tag{4.10}$$

La vitesse de la bille en plomb est alors définie par l'équation suivante :

$$v(t) = \dot{z}(t) = C_1 \Gamma_1 \exp(\Gamma_1 t) + C_2 \Gamma_2 \exp(\Gamma_2 t) \tag{4.11}$$

Avec Γ_1 et Γ_2 des fonctions de α et K données par les équations (4.6)-(4.7).

Détermination des constantes C_1 et C_2

On considère les conditions aux limites suivantes :

- la bille se trouve en $z = z_0$ au temps initial, soit $z(0) = z_0$ (CI 1)
- la bille est lâchée sans vitesse initiale, soit $\dot{z}(0) = 0$ (CI 2)

On en déduit : $C_1 = \left[z_0 - \frac{\rho_{pb} V_{pb} g}{K} \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right)\right] \frac{\Gamma_2}{\Gamma_2 - \Gamma_1}$ et $C_2 = \left[z_0 - \frac{\rho_{pb} V_{pb} g}{K} \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right)\right] \frac{\Gamma_1}{\Gamma_1 - \Gamma_2}$.

Le modèle régi par l'Eq.(4.10) contient deux paramètres ajustables, le coefficient de frottement fluide α et le coefficient de frottement sec K.

4.4.2 Cas particuliers

Examinons deux cas particuliers, le cas d'un frottement purement visqueux et le cas d'un frottement purement solide, qui nous serviront pour comprendre la dynamique de notre système.

Cas d'un frottement purement visqueux

Considérons que la bille en plomb chute dans un liquide purement visqueux. On peut omettre le terme de friction solide (Kz) dans l'Eq.(4.5). La position $z(t)$ et la vitesse $v(t)$ de la bille en plomb sont alors régies par les équations suivantes (avec les conditions initiales (CI 1) et (CI 2)) :

$$z(t) = \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) g \left(\frac{\rho_{pb} V_{pb}}{\alpha}\right)^2 \left[z_0 - 1 + \frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}} t + \exp\left(-\frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}} t\right)\right] \tag{4.12}$$

$$v(t) = \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) g \left(\frac{\rho_{pb} V_{pb}}{\alpha}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{\alpha}{\rho_{pb} V_{pb}} t\right)\right] \tag{4.13}$$

Selon l'Eq.(4.12), la position de la bille en plomb évolue exponentiellement avec le temps (régime transitoire) puis augmente linéairement (régime stationnaire). En raisonnant sur la vitesse, celle-ci augmente jusqu'à atteindre une vitesse limite aux temps longs définie par :

$$v_{lim} = \lim_{t \to +\infty} v(t) = \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) g \left(\frac{\rho_{pb} V_{pb}}{\alpha}\right) \tag{4.14}$$

Cas d'un frottement purement solide

Considérons désormais que le frottement est purement frictionnel, avec un coefficient de friction K constant. Cette fois-ci, c'est le terme ($\alpha \dot{z}$) qui est omis dans l'Eq.(4.5). L'équation du mouvement s'écrit (avec les conditions initiales (CI 1) et (CI 2)) :

$$z = z_{eq} + (z_0 - z_{eq}) \cos\left(\sqrt{\frac{K}{\rho_{pb} V_{pb}}} t\right) \tag{4.15}$$

Avec $z_{eq} = \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right) g \frac{\rho_{pb} V_{pb}}{K}$, la position d'équilibre de la bille en plomb.

4.5 Résultats et discussion

Cette expérience de chute de bille a été réalisée pour 4 cas, en faisant varier soit la viscosité du fluide (η_f) soit l'amplitude vibration (A) (fréquence fixée à 80 Hz). Les conditions expérimentales sont résumées dans le tableau 4.1. Dans un premier temps, nous proposons de commenter le comportement de la bille en plomb dans le milieu sous vibrations. Dans un second temps, nous exploitons les valeurs des paramètres extraites de l'ajustement des équations (4.10) et (4.11) aux données expérimentales. Précisions qu'à $t = 0$ s, la bille se situe en $z = 0$, autrement dit $z_0 = 0$ dans les constantes C_1 et C_2

des équations (4.10)-(4.11).

4.5.1 Dynamique du système

On s'intéresse dans ce paragraphe à comprendre la dynamique de la bille en plomb dans la suspension granulaire vibrée. Pour plus de clarté, on propose d'analyser en détails un des 4 cas, à savoir $\eta_f = 661$ mPa.s, $A = 26.5$ μm. La description du comportement de la bille qui en sera donnée sera valable pour les autres cas. Sur la figure 4.9(a), le modèle (Eq.(4.10)) s'ajuste parfaitement aux données expérimentales, avec les paramètres $\alpha = 50.1$ kg.s^{-1} et $K = 0.192$ kg.s^{-2}. En l'absence de billes de verre, le coefficient de frottement fluide défini par $\alpha = 6\pi\eta_f R_{pb}$ est de 0.022 kg.s^{-1}. La force de frottement entre la bille en plomb et l'Emkarox seul est très inférieur à celle entre la bille en plomb et la suspension granulaire (billes de verre et Emkarox). A partir de la position de la bille, on peut obtenir sa vitesse au cours du temps en dérivant [24] les points expérimentaux de la figure 4.9(a). Un tel résultat est présenté en Fig.4.9(b). Les points obtenus (tirés de l'expérience) sont correctement décrits par l'équation (4.11), avec les paramètres $\alpha = 50.1$ kg.s^{-1} et $K = 0.192$ kg.s^{-2} déterminés précédemment.

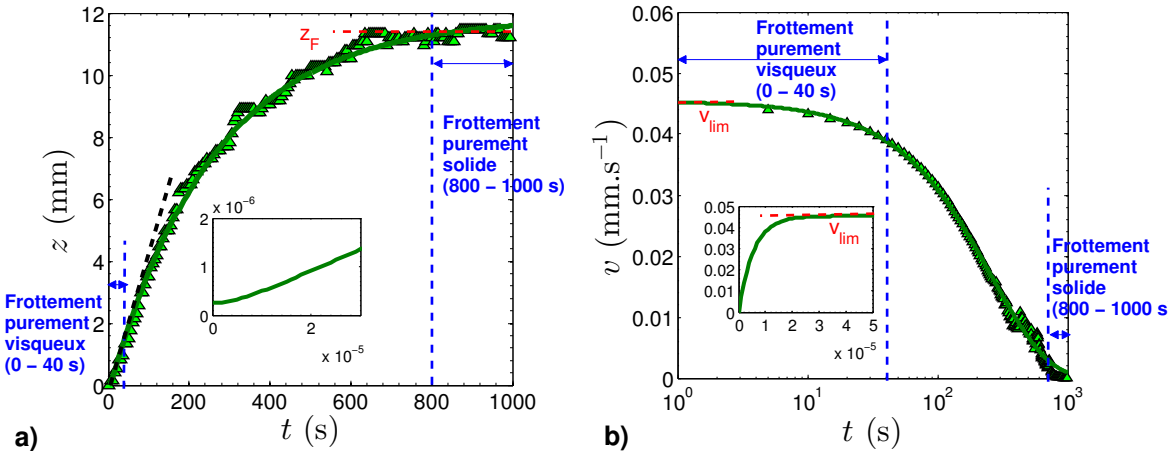


FIGURE 4.9 – a) Évolution temporelle de la position de la bille en plomb dans la suspension granulaire composée de billes de verre immergées dans un mélange Emkarox-eau de viscosité $\eta_f = 661$ mPa.s, vibrée à $f = 80$ Hz, $A = 26.5$ μm. La ligne continue matérialise l'ajustement de l'Eq.(4.10) aux données expérimentales, dont un zoom est donné en insert. La ligne noire en pointillée est une droite linéaire. On note z_F la position finale de la bille en plomb. b) Évolution temporelle de la vitesse de la bille en plomb, obtenue en dérivant la courbe de la figure (a), pour le même système. La ligne noire matérialise l'ajustement des données par l'Eq.(4.11), dont un zoom est donné sur les temps courts en insert. On note la vitesse limite v_{lim}.

24. La courbe de la figure 4.9(a) est lissée (fonction sgolay sur Matlab) puis dérivée.

Examinons plus en détails la dynamique du système. Dans les inserts des figures 4.9(a) et (b), nous avons représenté le résultat du modèle (Eqs.(4.10)-(4.11)) aux temps courts. Le comportement est typique d'une chute de bille dans un liquide purement visqueux : la position évolue exponentiellement puis linéairement avec le temps pour atteindre une vitesse limite $v_{lim} = 0.045$ m.s^{-1}. Cette vitesse limite peut être évaluée par l'Eq.(4.14) avec $\alpha = 50.1$ kg.s^{-1}. Expérimentalement, il est difficile d'atteindre le comportement du système aux temps très courts (partie exponentielle), nous ne captons que la réponse linéaire du système. Dans cet exemple, on peut estimer que la suspension granulaire dans laquelle est immergée la bille en plomb se comporte comme un liquide purement visqueux jusqu'à $t \approx 40$ s. Il est donc possible de définir une viscosité locale pour notre suspension, que nous avons noté η_s, et qui sera déterminée par le coefficient de frottement fluide α. Cette remarque confirme les résultats obtenues en rhéologie. Nous avons explicitement montré que les vibrations faisaient apparaître un plateau newtonien de viscosité η_0, à condition d'être à faible cisaillement ($\dot{\gamma} \lesssim 1$ s^{-1}). Le cisaillement maximal provoqué par le déplacement de la bille en plomb peut être évaluée par $v_{lim}/r \sim 0.03$ s^{-1}, on est donc dans la gamme de taux de cisaillement dans laquelle se situe η_0. Nous pourrons donc aisément comparer les valeurs de η_s obtenues par IRM et les valeurs de η_0 obtenues par rhéométrie.

Aux temps très longs, pour $t \gtrsim 800$ s, le comportement de la bille en plomb est radicalement différent puisque la bille stagne à une profondeur $z \approx 11.6$ mm et la vitesse est nulle. Le modèle prédit ce type de comportement puisque quand t tend vers l'infini, $z(t)$ tend vers $z_F = \frac{\rho_{pb} V_{pb} g}{K}\left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right)$ et la vitesse tend vers 0. Pour notre exemple, $z_F = 11.9$ mm, ce qui correspond aux données expérimentales. Dans l'expression de z_F, la viscosité de la suspension ne semble pas intervenir, ou tout du moins elle intervient indirectement à travers le coefficient de frottement sec K comme nous le verrons par la suite. On peut donc penser que, pour $t \gtrsim 800$ s, le mouvement de la bille en plomb est entièrement contrôlé par les forces frictionnelles. Pour s'en convaincre, il suffit de reprendre le cas particulier d'un frottement purement frictionnel traité dans la section précédente (Eq.(4.15)). En partant d'une position initiale $z_0 = z_F$ (égal à z_{eq} dans l'Eq.(4.15)), la bille reste à cette position sous l'effet des forces de friction.

A la suite de ces remarques, il est désormais possible d'interpréter le mouvement de la bille en plomb dans la suspension granulaire vibrée. Au début de l'expérience, de $t = 0$ à environ 40 s, la suspension granulaire se comporte comme un liquide purement visqueux, sans friction entre la bille en plomb et les billes de verre. La bille se déplace linéairement avec le temps dans le système avec une vitesse constante ($v = v_{lim} = 0.043$ m.s^{-1}). Par la suite, plus la bille s'enfonce dans le milieu, plus la force frictionnelle ($F_f = Kz$) devient importante, jusqu'à l'emporter sur la force visqueuse ($F_v = \alpha \dot{z}$).

Le suspension granulaire ne se comporte plus comme un fluide purement visqueux. Rappelons que cette force frictionnelle est due à la pression granulaire qui est proportionnelle à z. A une certaine profondeur ($z = z_F$), les forces frictionnelles sont tellement importantes qu'elles compensent le poids de la bille et qu'elles arrêtent sa progression dans l'échantillon.

Résumé :

La chute d'une bille dans une suspension granulaire est différente de celle dans un liquide purement visqueux :

- la bille s'enfonce dans le milieu puis s'arrête à une position donnée
- ce comportement atypique est dû à la présence de forces de friction qui s'ajoutent aux forces de frottement fluide
- aux temps courts, la force de frottement subie par la bille est purement visqueuse et la suspension granulaire se comporte comme un fluide visqueux newtonien de viscosité η_s
- aux temps longs, la force de friction est telle qu'elle provoque l'arrêt de la bille en compensant son poids.

4.5.2 Évolution des paramètres α et K en fonction de la viscosité du fluide interstitiel et des paramètres de vibrations

On s'intéresse désormais aux paramètres α et K, respectivement le coefficient de frottement fluide et le coefficient de frottement solide, en fonction de la viscosité du fluide interstitiel (η_f) qui compose la suspension granulaire et l'amplitude de vibration (A). Pour se faire, nous ajustons le modèle (Eq.(4.10)) aux données expérimentales (position z en fonction du temps), pour les 4 cas envisagés (Fig.4.10). Les paramètres sont résumés dans le tableau 4.1. Notons que le modèle s'ajuste parfaitement aux données expérimentales. En dérivant les points expérimentaux de la figure (4.10), nous pouvons extraire la vitesse au cours du temps pour ces 4 cas, telle qu'elle est présentée en Fig.4.11. Le modèle (Eq.(4.11)), utilisé avec les paramètres du tableau 4.1, ne s'ajuste pas parfaitement aux données expérimentales aux temps longs. Cette lacune est due à des difficultés de dérivation [25].

25. La vitesse est obtenue en dérivant la courbe expérimentale position versus temps, après lissage de la courbe. Le lissage n'étant pas parfait aux temps longs du fait d'un manque de points, les erreurs se répercutent sur la dérivée.

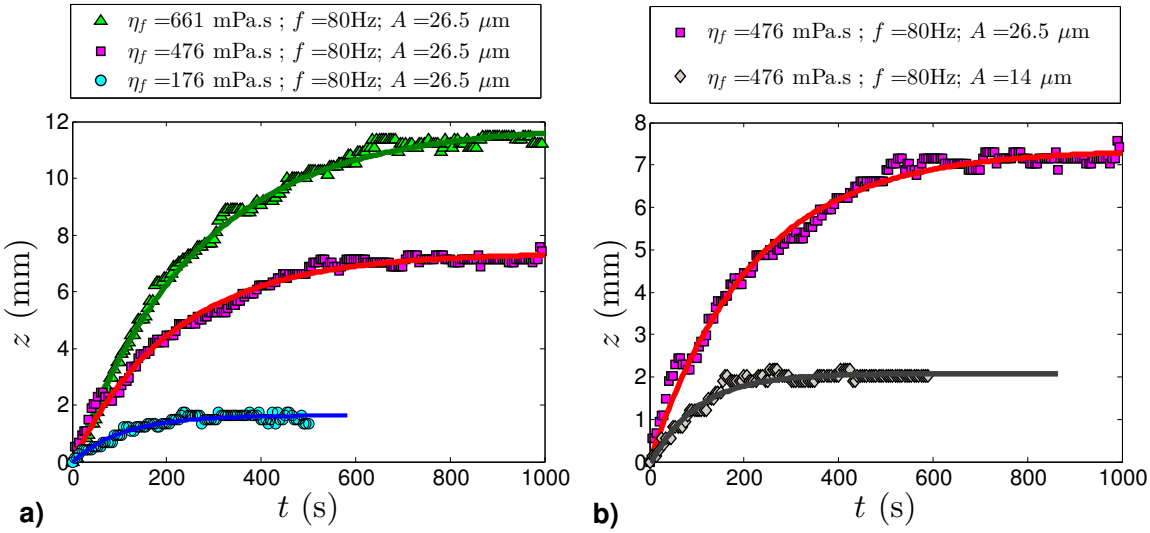


FIGURE 4.10 – Évolution temporelle de la position de la bille en plomb dans la suspension granulaire composée de billes de verre immergées dans un mélange d'Emkarox-eau, pour a) trois valeurs de viscosité de fluide interstitiel (η_f = 176, 476 et 661 mPa.s) à une amplitude de vibrations fixée à A = 28 μm (f = 80 Hz), b) deux valeurs d'amplitude de vibrations (A = 28 et 53 μm) à une viscosité de fluide fixée à η_f = 476 mPa.s. Les lignes continues matérialisent l'ajustement de l'Eq.(4.10) aux données expérimentales. Les paramètres du modèle sont résumés dans le tableau 4.1.

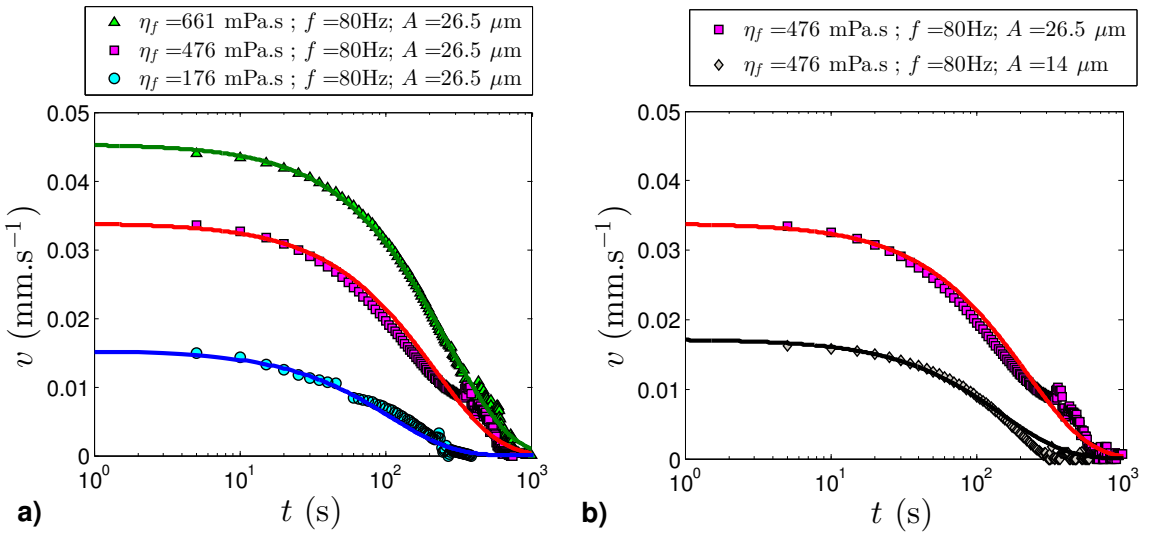


FIGURE 4.11 – Évolution temporelle de la vitesse (obtenue par dérivation des courbes de la figure4.10) de la bille en plomb dans la suspension granulaire composée de billes de verre immergées dans un mélange d'Emkarox-eau, pour a) trois valeurs de viscosité de fluide interstitiel (η_f = 176, 476 et 661 mPa.s) à une amplitude de vibrations fixée à A = 28 μm (f = 80 Hz), b) deux valeurs d'amplitude de vibrations (A = 28 et 53 μm) à une viscosité de fluide fixée à η_f = 476 mPa.s. Les lignes continues matérialisent le résultat de l'Eq.(4.11) avec les paramètres du tableau 4.1.

TABLE 4.1 – Évolution des paramètres du modèle pour différentes valeurs de viscosité du fluide interstitiel (η_f) et d'amplitude de vibration (A), la fréquence de vibration étant fixée à $f = 80$ Hz.

Paramètres expérimentaux	η_f (mPa.s)	176	476	661	476
	A (μm)	26.5	26.5	26.5	14
Paramètres du modèle	K (kg.s^{-2})	1.384	0.309	0.192	0.876
	α (kg.s^{-1})	148.6	67.1	50.1	132.2
Paramètres déduits	μ (-)	0.60	0.13	0.08	0.38
	z_F (mm)	1.6	7.4	11.9	2.6
	η_s (Pa.s)	4380	1977	1476	3897
	v_{lim} (mm.s^{-1})	0.015	0.034	0.045	0.017

Comportement du coefficient de frottement fluide α

Le paramètre α, défini par $6\pi\eta_s R_{pb}$ (loi de Stokes), permet de déterminer la viscosité locale de la suspension η_s. Rappelons que ceci est possible car la suspension granulaire vibrée se comporte comme un fluide visqueux newtonien au début de l'expérience. D'après le tableau 4.1, on constate que η_s diminue quand la viscosité du fluide η_f augmente et quand l'amplitude de vibration A augmente. D'après ces points, on a $\eta_s \propto 1/\eta_f$ et $\eta_s \propto 1/A$. N'ayant que quatre points expérimentaux[26], il est délicat d'affirmer un tel résultat. Néanmoins, il est possible de comparer ces tendances à celles obtenues en rhéologie. Le taux de cisaillement généré par la bille en plomb étant faible, il est possible de comparer η_s à la viscosité de plateau η_0. Nous avons montré au Chapitre 2 que la viscosité au plateau η_0 évoluait en Pe_{lub}^{-1} avec $Pe_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\mu P_g d}$ avec η_f la viscosité du fluide, A et f l'amplitude et la fréquence des vibrations, μ le coefficient de friction effectif, P_g la pression granulaire et d la taille des billes. Cette relation implique $\eta_0 \propto 1/\eta_f A$, comme observé pour η_s. Les tendances obtenues avec le rhéomètre à chute de bille par IRM confirment celles obtenues avec le rhéomètre à poudre (Chapitre 2).

Nous pouvons également déterminer la vitesse limite v_{lim} atteinte par la bille aux temps courts, dans le régime où la suspension granulaire se comporte comme un fluide visqueux. Cette vitesse est déterminée via l'Eq.(4.14). On constate que v_{lim} diminue quand η_f ou A diminuent (Tableau 4.1). Pour interpréter ce résultat, il suffit de raisonner par rapport à η_s. On considère dans ce cas que la bille en plomb est immergée dans un fluide visqueux de viscosité η_s. Une augmentation de η_s, provoquée par une diminution de η_f ou A, entraine une diminution de v_{lim}. En effet, la force de frottement fluide est d'autant plus importante que la viscosité de la suspension est grande, ce qui implique que la vitesse limite est atteinte plus rapidement.

26. Les résultats présentés ici font partie des premiers essais. Une campagne de mesures sera prévue par la suite.

Comportement du coefficient de frottement solide K

Le paramètre K permet de définir deux quantités :

- le coefficient de frottement entre la bille en plomb et les billes de verre exprimé par $\mu = \frac{K}{4\pi(\rho_{pb}-\rho_s)\phi g R_{pb}^2}$ (section 4.4.1)
- la position finale de la bille, définie par $z_F = \frac{\rho_{pb} V_{pb} g}{K}\left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_{pb}}\right)$ (section 4.5.1)

Premier point, le coefficient de friction μ augmente quand la viscosité du fluide η_f ou l'amplitude de vibration A diminue. Raisonnons désormais par rapport à la viscosité de la suspension η_s. Dans ces conditions, μ augmente quand η_s augmente. Pour comprendre ce résultat, nous pouvons utiliser la rhéologie μ(I) développée par Boyer *et al.* [27] sur la modélisation rhéologique des suspensions granulaires uniquement soumises à un écoulement de cisaillement. Le coefficient de friction effectif est défini comme la somme de deux termes, un terme dû à la contribution des contacts frictionnels et un terme dû à la contribution hydrodynamique via les contraintes visqueuses (section 1.3.1). Pour des billes immergées dans un fluide de viscosité η_f, μ est fonction croissante d'un nombre sans dimensions, le nombre visqueux $I_v = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{P_g}$. Lorsque η_f augmente, μ augmente également, du fait de la contribution du fluide dans la contrainte de cisaillement. Dans notre cas, la bille est immergée dans un fluide de viscosité η_s. Par analogie, quand η_s augmente, μ augmente. Étant donné que $\eta_s \propto \frac{1}{\eta_f A}$, μ augmente quand η_f ou A diminuent, ce qui explique les tendances observées (Tableau 4.1). On pourrait ajouter que μ semble proportionnel à η_s mais sans preuve suffisante étant donné le faible nombre de données expérimentales. Le coefficient de frottement solide est donc couplé au coefficient de frottement fluide via la viscosité de la suspension granulaire.

Second point, la position finale atteinte par la bille en plomb est d'autant plus importante que le fluide est visqueux ou que l'amplitude de vibration est grande. Comme énoncé précédemment, la bille arrête de s'enfoncer dans le milieu quand les forces de frottement fluide et solide compensent son poids. Ce comportement est inhérent à la présence des forces frictionnelles. En effet, sans cette force, la bille continuerait sa course. Quand $z = z_F$, la force frictionnelle est égale à Kz_F avec $K \propto \mu$. Nous avons vu que μ augmente quand η_f ou A diminuent. De ce fait, la bille n'a pas besoin de s'enfoncer beaucoup pour que les forces de frottement compensent la gravité, ce qui implique que z_F diminue quand η_f ou A diminuent.

Nous pouvons noter que la force frictionnelle $F_f = Kz_F$ subie par la bille en position finale est

constante et vaut 2.3 mN. La contrainte frictionnelle résultante [27], définie par $\sigma_f = \frac{F_f}{4\pi R_{pb}^2}$, est également constante et égale à environ 56 Pa.

Comparaison quantitative de η_0 et η_s

Il est désormais très tentant de comparer les valeurs quantitatives de η_s aux valeurs de η_0 obtenues avec le rhéométre à poudre. La vraie question est : est ce que la technique proposée ici permet de déterminer la viscosité d'une suspension granulaire vibrée ? Pour se faire, on propose de superposer à la figure (2.4) (η_0 versus Pe_{lub}) les valeurs de η_s en fonction de Pe_{lub}. La contrainte frictionnelle à considérer est de 76 Pa. Cette valeur est plus importante que la valeur précédente car nous avons pris en compte la contrainte frictionnelle initiale (la position initiale de la bille est à 5 mm de la surface libre) [28]. Sur la figure 4.12, on constate que les valeurs de $\eta_s = \alpha/6\pi R_{pb}$ sont très proches de celles obtenues en rhéométrie. En prenant en compte toutes les hypothèses que nous avons faites, le résultat est plus que satisfaisant. L'écart observé provient du fait que la mesure faite en rhéologie est globale et moyennée sur toute la hauteur alors que la mesure faite par IRM est une mesure locale. La technique de viscosimètre à chute de bille couplée à l'IRM semble être une bonne technique pour déterminer la viscosité d'une suspension granulaire vibrée.

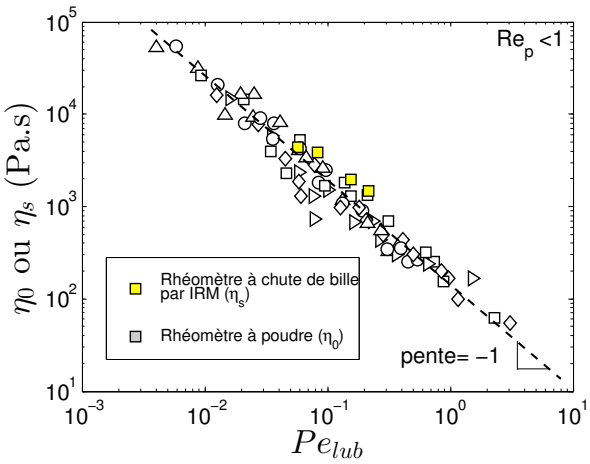


FIGURE 4.12 – Viscosité au plateau (η_0) obtenue par avec le rhéométre à poudre (Chapitre 2) et viscosité de la suspension (η_s) obtenue par le rhéomètre à chute de bille par IRM (Chapitre 4), en fonction du nombre de Péclet de lubrification ($Pe_{lub} = \eta_f A(2\pi f)/\mu P_g d$).

27. La contrainte frictionnelle est définie explicitement par $\sigma_f = \frac{F_f}{4\pi R_{pb}^2} = \frac{K}{4\pi R_{pb}^2} z_F = \mu(\rho_{pb} - \rho_s)\phi_g g z_F = \mu P_g$ (loi de Coulomb).

28. La contrainte frictionnelle vaut $\sigma_f = K z_F + \mu(\rho_v - \rho_f)\phi_g g z_i$ =56+20=76 Pa, avec z_i= 5 mm.

Résumé :

Quand la viscosité du fluide dans lequel sont immergées les billes de verre et/ou l'amplitude de vibration augmentent :

- la bille en plomb s'enfonce plus profondément dans le système
- le coefficient de friction diminue
- la viscosité de la suspension diminue

L'origine de ces phénomènes s'explique si on considère que la bille en plomb est immergée dans un fluide de viscosité égale à celle de la suspension granulaire. En effet, la suspension granulaire se comporte comme un fluide newtonien de viscosité η_s aux temps courts. La rhéométrie à chute de bille par IRM permet alors d'effectuer une mesure locale de cette viscosité qui s'avère être en accord avec les mesures globales obtenues avec le rhéomètre à poudre.

4.5.3 Conclusion

Dans ce chapitre d'ouverture, nous avons montré qu'il était possible de déterminer la viscosité d'une suspension granulaire vibrée par un autre moyen que le rhéomètre à poudre. En analysant la chute d'une bille plus lourde que les billes de verre dans la suspension granulaire par IRM, nous avons réussi à sonder la viscosité locale de notre système. On peut parler de « viscosité » car la suspension granulaire se comporte comme un fluide visqueux newtonien au début de l'expérience. Les valeurs de viscosité obtenues sont relativement proches de celles obtenues en rhéométrie au Chapitre 2. La rhéométrie à chute de bille par IRM se révèle être un outil efficace pour effectuer des mesures de viscosité locales dans un milieu opaque. L'IRM permet en effet de repérer avec précision la position de la grosse bille dans le volume de l'échantillon. A l'avenir, il serait très intéressant d'approfondir cette étude en effectuant d'autres mesures, en testant par exemple d'autres tailles de billes de verre et d'autres fréquences de vibration.

Conclusion générale et perspectives

Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié expérimentalement la rhéophysique des suspensions granulaires, c'est à dire des suspensions composées de particules non browniennes immergées dans un fluide en concentration dense ($\phi \approx 0.61$). Ces matériaux présentent des comportements complexes non-newtoniens (seuil d'écoulement, rhéofluidification, rhéoépaississement, contraintes normales) qui ont fait l'objet d'intenses recherches cette dernière décennie. Au cours de ce travail de thèse, nous avons choisi d'étudier l'effet des vibrations sur les propriétés physiques et mécaniques de ces matériaux. Certains auteurs se sont d'ores et déjà intéressés à caractériser l'influence de ce type de sollicitation sur des milieux granulaires secs. Par contre, très peu d'études existent sur son homologue saturé malgré des enjeux environnementaux, industriels et fondamentaux. Notre objectif a été de répondre à la question suivante :

Quelle est l'influence des vibrations, du fluide interstitiel, de la taille des billes sur le comportement rhéologique d'une suspension granulaire ? Quel est le lien entre ce comportement macroscopique et la dynamique du système à l'échelle du grain ?

Pour répondre à cette question, nous avons cherché à caractériser le comportement d'une suspension granulaire modèle, composée de billes de verre sphériques et monodisperses immergées dans un fluide newtonien, soumise à des vibrations verticales.

Dans un premier temps, nous avons choisi de nous intéresser au comportement rhéologique d'une suspension granulaire vibrée. Les expériences ont été réalisées grâce à un rhéomètre à poudre qui n'est autre qu'un rhéomètre classique couplé à une cellule vibrante. Cette étude est le prolongement du travail réalisé par Marchal *et al.* [25] sur la rhéologie des milieux granulaires secs vibrés sur ce même dispositif expérimental. Sous vibrations et en régime stationnaire, la suspension granulaire modèle présente une transition de régime pour une contrainte σ égale à la contrainte frictionnelle σ_f entre

un régime dominé par les vibrations à bas cisaillement et un régime dominé par l'écoulement de cisaillement à haut gradient de vitesse. Pour $\sigma > \sigma_f$, le système se comporte comme une suspension granulaire non vibrée et ses propriétés sont analogues à celles d'une suspension homogène de sphères dures. Durant ce travail thèse, nous nous sommes surtout intéressés à comprendre le comportement du système dans le régime contrôlé par les vibrations ($\sigma < \sigma_f$). Cette sollicitation supprime la contrainte seuil du matériau et fait apparaître un plateau newtonien de viscosité η_0. Pour des nombres de Reynolds particulaires inférieurs à 1, lorsque le régime est contrôlé par les forces visqueuses, la viscosité η_0 dépend d'un seul nombre sans dimension que nous avons appelée le nombre de Péclet de lubrification défini par $Pe_{lub} = \frac{\eta_f A(2\pi f)}{\sigma_f d}$ tel que $\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1}$. Ce nombre quantifie l'effet des forces de lubrification qui contribuent à la décohésion du système par rapport à l'effet des forces frictionnelles proportionnelles à la pression granulaire qui participent à la cohésion du système.

Nous avons ensuite chercher à modéliser le comportement sous écoulement de la suspension granulaire vibrée. La rhéologie $\mu(I)$ développé par l'équipe de Pouliquen [57, 27] ne semble pas adaptée à notre système puisqu'elle ne permet pas de prédire la présence d'un plateau newtonien sous vibrations. Le modèle que nous proposons est basé sur une approche phénoménologique à deux états (un état consolidé et un état mobile) de la dynamique du réseau de contacts. Avec seulement 4 paramètres ajustables et intrinsèques au système, le modèle est capable de prédire et de décrire le comportement d'une suspension granulaire non seulement en conditions stationnaires mais aussi en conditions instationnaires, dans le régime linéaire ou non linéaire, en présence et en absence de vibrations, en sec et en saturé. Le modèle a été confronté aux résultats expérimentaux en soumettant l'échantillon à diverses sollicitations (échelon de contrainte, rampe continue de contrainte, contrainte sinusoïdale).

Dans un second temps, nous avons sondé expérimentalement la dynamique du système à l'échelle du grain pour tenter de relier le comportement rhéologique macroscopique à sa microstructure. En utilisant à la fois la spectroscopie mécanique et la diffusion de lumière multispeckle (MSDWS), nous avons pu montré que le comportement macroscopique observé aux temps longs ($\eta_0 \propto Pe_{lub}^{-1}$) provenait d'une cinétique de réarrangement collectif des grains. La viscosité η_0 est alors définie par $\eta_0 = G\tau_R$ avec G le module de cisaillement (indépendant de Pe_{lub}) et τ_R le temps caractéristique de réarrangement des grains tel que $\tau_R \propto Pe_{lub}^{-1}$. Les expériences de diffusion de lumière étant réalisées en l'absence totale d'écoulement de cisaillement, le comportement observé jusqu'à maintenant est inhérent aux vibrations et non à des hétérogénéités (par exemple la localisation) qui peuvent apparaître sous écoulement.

Aux temps courts, le comportement est radicalement différent. En réalisant des expériences de dif-

fusion de lumière avec un photomultiplicateur, nous avons montré que les contacts entre grains étaient de nature collisionnelle (et non lubrifiée comme aux temps longs). De ce fait, le temps caractéristique du système, qui n'est autre qu'un temps de collision entre deux particules, ne dépend pas de la viscosité du fluide. Le paramètre pertinent est alors le nombre d'accélération Γ.

Dans le dernier chapitre du manuscrit, nous avons proposé en guise d'ouverture un autre type d'expérience : la rhéométrie à chute de bille par IRM (Imagerie par Résonance Magnétique). A l'instar d'un viscosimètre à chute de bille, nous suivons le déplacement d'une grosse bille dans la suspension granulaire modèle. L'analyse de sa position au cours du temps nous permet notamment de déterminer une viscosité locale. Les valeurs obtenues sont en accord avec les mesures macroscopiques réalisées avec le rhéomètre à poudre, compte tenu des incertitudes expérimentales. Ces expériences méritent d'être approfondies à l'avenir.

Même si nous avons répondu aux principales questions posées en introduction, telles que l'influence des vibrations, de la viscosité du fluide interstitiel ou encore de la taille des billes sur le comportement rhéologique d'une suspension granulaire modèle, ce travail de thèse ouvre de nombreuses perspectives. Comme nous venons de l'évoquer, il serait très intéressant de poursuivre les expériences de rhéométrie à chute de bille par IRM. En effet, il serait pertinent de tester d'autres tailles de billes de verre et d'autres fréquences de vibration pour valider notre approche et pourquoi pas étendre cette technique à d'autres systèmes opaques.

L'idéal serait évidemment de pourvoir visualiser la dynamique des grains sous vibrations en 3D. Dans ce contexte, la tomographie aux rayons X semble parfaitement adaptée pour analyser l'évolution de la mobilité des grains sous vibrations. Nous avons eu l'occasion d'effectuer deux runs sur synchrotron en Suisse (ligne Tomcat, Paul Sherrer Institute). L'idée est de suivre la trajectoire de marqueurs (billes de verre recouvertes d'argent) dans une suspension granulaire modèle composée non pas de billes de verre mais de billes en zirconium pour obtenir un signal de meilleure qualité (Fig.1). Les données expérimentales sont en cours d'exploitation.

Le travail expérimental présenté ici pourrait également être complété par des simulations numériques par Dynamique Moléculaire. Un travail est actuellement en cours dans notre équipe pour simuler le comportement d'une suspension granulaire saturée soumise à un écoulement de cisaillement et à des

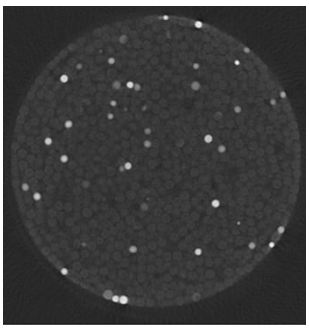


FIGURE 1 – Cliché obtenu au synchrotron (ligne TOMCAT, Paul Sherrer Institut). La suspension granulaire est composée de billes en zirconium (en gris sur la figure) de 300 μm de diamètre immergées dans une huile silicone de viscosité 556 mPa.s, vibrée à $f = 100$ Hz, $A = 60$ μm. Les billes marquées (en blanc sur la figure) sont des billes de verre recouvertes d'argent de 300 μm de diamètre.

vibrations verticales. Le but est de comparer les résultats obtenus, comme par exemple la contrainte en fonction du taux de cisaillement, avec ceux obtenus avec le rhéomètre à poudre ou le rhéomètre à chute de bille par IRM.

Parmi les résultats présentés tout au long de ce manuscrit, une question cruciale reste en suspens : pourquoi η_0 varie en $1/Pe_{lub}$? Ou plus exactement pourquoi le temps caractéristique du système aux temps longs (τ_R) varie en $1/Pe_{lub}$ (étant donné que $\eta_0 = G\tau_R$) ? Dans la relation $\tau_R \propto Pe_{lub}^{-1}$, il manque un temps caractéristique. Un paramètre qui n'a pas été pris en compte tout au long de notre travail est l'influence de la hauteur de l'empilement granulaire. Le temps manquant est donc peut-être fonction de ce facteur et pourrait être par exemple le temps mis par une bille de verre pour se déplacer de la hauteur de l'empilement granulaire h, défini par $\sqrt{\rho_p/P_g}h$. Pour tester une telle hypothèse, il serait pertinent de réaliser des mesures pour différentes valeurs de h. Ce type d'expérience est délicate car il faut contrôler la fraction volumique.

Bibliographie

[1] Y. Forterre and O. Pouliquen, "Flows of dense granular media," *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 40, pp. 1–24, 2008.

[2] G. Couarraze and J.-L. Grossiord, "Initiation à la rhéologie," 1983.

[3] C. W. Macosko and J. Mewis, *Suspension Rheology.* VCH, 1994.

[4] H. A. Barnes, *A handbook of elementary rheology.* University of Wales, Institute of Non-Newtonian Fluid Mechanics Aberystyth,, England, 2000.

[5] E. Guyon, J.-P. Hulin, L. Petit, and P.-G. De Gennes, *Hydrodynamique physique.* EDP sciences Les Ulix, France, 2001.

[6] P. Coussot and C. Ancey, "Rheophysical classification of concentrated suspensions and granular pastes," *Physical Review E*, vol. 59, no. 4, p. 4445, 1999.

[7] P. Coussot, *Rheometry of pastes, suspensions, and granular materials : applications in industry and environment.* John Wiley & Sons, 2005.

[8] P. Coussot, *Rhéophysique des pâtes et des suspensions.* EDP sciences, 2012.

[9] P. Coussot, *Rhéophysique.* EDP sciences, 2012.

[10] G. Y. Onoda and E. G. Liniger, "Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset," *Physical Review Letters*, vol. 64, no. 22, p. 2727, 1990.

[11] T. C. Hales, "A proof of the kepler conjecture," *Annals of Mathematics*, pp. 1065–1185, 2005.

[12] G. Scott and D. Kilgour, "The density of random close packing of spheres," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 2, no. 6, p. 863, 1969.

[13] F. Radjai, M. Jean, J.-J. Moreau, and S. Roux, "Force distributions in dense two-dimensional granular systems," *Physical review letters*, vol. 77, no. 2, p. 274, 1996.

[14] F. Radjai, S. Roux, and J. J. Moreau, "Contact forces in a granular packing," *Chaos : An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science*, vol. 9, no. 3, pp. 544–550, 1999.

[15] T. S. Majmudar and R. P. Behringer, "Contact force measurements and stress-induced anisotropy in granular materials," *Nature*, vol. 435, no. 7045, pp. 1079–1082, 2005.

[16] A. J. Liu and S. R. Nagel, "Nonlinear dynamics : Jamming is not just cool any more," *Nature*, vol. 396, no. 6706, pp. 21–22, 1998.

[17] N. Frankel and A. Acrivos, "On the viscosity of a concentrated suspension of solid spheres," *Chemical Engineering Science*, vol. 22, no. 6, pp. 847–853, 1967.

[18] B. Andreotti, Y. Forterre, and O. Pouliquen, *Les milieux granulaires : entre fluide et solide.* EDP sciences, 2012.

[19] J. J. Stickel and R. L. Powell, "Fluid mechanics and rheology of dense suspensions," *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 37, pp. 129–149, 2005.

[20] C. Ancey and P. Coussot, "Transition frictionnelle/visqueuse pour une suspension granulaire," *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences-Series IIB-Mechanics-Physics-Astronomy*, vol. 327, no. 5, pp. 515–522, 1999.

[21] N. Huang, G. Ovarlez, F. Bertrand, S. Rodts, P. Coussot, and D. Bonn, "Flow of wet granular materials," *Physical review letters*, vol. 94, no. 2, p. 028301, 2005.

[22] J. A. Dijksman, E. Wandersman, S. Slotterback, C. R. Berardi, W. D. Updegraff, M. van Hecke, and W. Losert, "From frictional to viscous behavior : Three-dimensional imaging and rheology of gravitational suspensions," *Physical Review E*, vol. 82, no. 6, p. 060301, 2010.

[23] A. Fall, H. De Cagny, D. Bonn, G. Ovarlez, E. Wandersman, J. A. Dijksman, and M. Van Hecke, "Rheology of sedimenting particle pastes," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 57, no. 4, pp. 1237–1246, 2013.

[24] G. MiDia, "On dense granular flows," *Eur. Phys. J. E*, vol. 14, pp. 341–365, 2004.

[25] P. Marchal, N. Smirani, and L. Choplin, "Rheology of dense-phase vibrated powders and molecular analogies," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 53, no. 1, pp. 1–29, 2009.

[26] D. Quémada, *Modélisation rhéologique structurelle : dispersions concentrées et fluides complexes.* Editions TEC & DOC, 2006.

[27] F. Boyer, É. Guazzelli, and O. Pouliquen, "Unifying suspension and granular rheology," *Physical review letters*, vol. 107, no. 18, p. 188301, 2011.

[28] G. Ovarlez, F. Bertrand, and S. Rodts, "Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 50, no. 3, pp. 259–292, 2006.

[29] G. Ovarlez, S. Rodts, X. Chateau, and P. Coussot, "Phenomenology and physical origin of shear localization and shear banding in complex fluids," *Rheologica acta*, vol. 48, no. 8, pp. 831–844, 2009.

[30] I. E. Zarraga, D. A. Hill, and D. T. Leighton Jr, "The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in newtonian fluids," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 44, no. 2, pp. 185–220, 2000.

[31] A. Singh and P. R. Nott, "Normal stresses and microstructure in bounded sheared suspensions via stokesian dynamics simulations," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 412, pp. 279–301, 2000.

[32] F. Boyer, O. Pouliquen, and É. Guazzelli, "Dense suspensions in rotating-rod flows : normal stresses and particle migration," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 686, pp. 5–25, 2011.

[33] T. Dbouk, L. Lobry, and E. Lemaire, "Normal stresses in concentrated non-brownian suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 715, pp. 239–272, 2013.

[34] F. Parsi and F. Gadala-Maria, "Fore-and-aft asymmetry in a concentrated suspension of solid spheres," *Journal of Rheology*, vol. 31, no. 8, pp. 725–732, 1987.

[35] F. Blanc, F. Peters, E. Lemaire, *et al.*, "Experimental signature of the pair-trajectories of rough spheres in the shear-induced microstructure in non-colloidal suspensions," *Physical review letters*, vol. 107, 2011.

[36] J. F. Brady and J. F. Morris, "Microstructure of strongly sheared suspensions and its impact on rheology and diffusion," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 348, pp. 103–139, 1997.

[37] A. Sierou and J. Brady, "Rheology and microstructure in concentrated noncolloidal suspensions," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 46, no. 5, pp. 1031–1056, 2002.

[38] O. Reynolds, "Lvii. on the dilatancy of media composed of rigid particles in contact. with experimental illustrations," *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, vol. 20, no. 127, pp. 469–481, 1885.

[39] D. Lootens, H. Van Damme, Y. Hémar, and P. Hébraud, "Dilatant flow of concentrated suspensions of rough particles," *Physical review letters*, vol. 95, no. 26, p. 268302, 2005.

[40] A. Fall, A. Lemaître, F. Bertrand, D. Bonn, and G. Ovarlez, "Shear thickening and migration in granular suspensions," *Physical review letters*, vol. 105, no. 26, p. 268303, 2010.

[41] A. Fall, N. Huang, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn, "Shear thickening of cornstarch suspensions as a reentrant jamming transition," *Physical review letters*, vol. 100, no. 1, p. 018301, 2008.

[42] H. Barnes, "Shear-thickening (dilatancy) in suspensions of nonaggregating solid particles dispersed in newtonian liquids," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 33, no. 2, pp. 329–366, 1989.

[43] E. Brown and H. M. Jaeger, "Shear thickening in concentrated suspensions : phenomenology, mechanisms, and relations to jamming," *Reports on Progress in Physics*, vol. 77, no. 4, p. 046602, 2014.

[44] J. F. Brady and G. Bossis, "The rheology of concentrated suspensions of spheres in simple shear flow by numerical simulation," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 155, pp. 105–129, 1985.

[45] R. Hoffman, "Discontinuous and dilatant viscosity behavior in concentrated suspensions. ii. theory and experimental tests," *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 46, no. 3, pp. 491–506, 1974.

[46] A. Fall, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn, "Yield stress and shear banding in granular suspensions," *Physical review letters*, vol. 103, no. 17, p. 178301, 2009.

[47] F. Gadala-Maria and A. Acrivos, "Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 24, no. 6, pp. 799–814, 1980.

[48] D. Leighton and A. Acrivos, "The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 181, pp. 415–439, 1987.

[49] D. Leighton and A. Acrivos, "Measurement of shear-induced self-diffusion in concentrated suspensions of spheres," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 177, pp. 109–131, 1987.

[50] A. Acrivos, "Shear-induced particle diffusion in concentrated suspensions of noncolloidal particles," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 39, no. 5, pp. 813–826, 1995.

[51] R. J. Phillips, R. C. Armstrong, R. A. Brown, A. L. Graham, and J. R. Abbott, "A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration," *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics (1989-1993)*, vol. 4, no. 1, pp. 30–40, 1992.

[52] J. F. Morris and F. Boulay, "Curvilinear flows of noncolloidal suspensions : The role of normal stresses," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 43, no. 5, pp. 1213–1237, 1999.

[53] D. Lhuillier, "Migration of rigid particles in non-brownian viscous suspensions," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 21, no. 2, p. 023302, 2009.

[54] J. Abbott, N. Tetlow, A. Graham, S. Altobelli, E. Fukushima, L. Mondy, and T. Stephens, "Experimental observations of particle migration in concentrated suspensions : Couette flow," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 35, no. 5, pp. 773–795, 1991.

[55] P. Marchal and L. Choplin, *Eléments de physique statistique appliqués à la rhéologie des milieux granulaires, Habilitation à diriger les recherches.* PhD thesis, Atelier national de reproduction des thèses, 2006.

[56] P. Marchal, "Viscoélasticité des milieux granulaires denses, habilitation à diriger les recherches," 2013.

[57] C. Cassar, M. Nicolas, and O. Pouliquen, "Submarine granular flows down inclined planes," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 17, no. 10, p. 103301, 2005.

[58] I. M. Krieger, "A dimensional approach to colloid rheology," *Journal of Rheology*, vol. 7, pp. 101–109, 1963.

[59] C. Chang and R. L. Powell, "Dynamic simulation of bimodal suspensions of hydrodynamically interacting spherical particles," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 253, pp. 1–25, 1993.

[60] I. M. Krieger, "Rheology of monodisperse latices," *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 3, no. 2, pp. 111–136, 1972.

[61] P. Gondret and L. Petit, "Dynamic viscosity of macroscopic suspensions of bimodal sized solid spheres," *Journal of rheology*, vol. 41, p. 1261, 1997.

[62] J. Chong, E. Christiansen, and A. Baer, "Rheology of concentrated suspensions," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 15, no. 8, pp. 2007–2021, 1971.

[63] R. F. Probstein, M. Sengun, and T. Tseng, "Bimodal model of concentrated suspension viscosity for distributed particle sizes," *Journal of Rheology*, vol. 38, p. 811, 1994.

[64] W. B. Russel, D. A. Saville, and W. R. Schowalter, *Colloidal dispersions.* Cambridge university press, 1992.

[65] C. d. de Kruif, E. Van Iersel, A. Vrij, and W. Russel, "Hard sphere colloidal dispersions : Viscosity

as a function of shear rate and volume fraction," *The Journal of chemical physics*, vol. 83, no. 9, pp. 4717–4725, 1985.

[66] A. Einstein, "A new determination of molecular dimensions," *Ann. Phys*, vol. 19, no. 2, pp. 289–306, 1906.

[67] G. Batchelor, "Brownian diffusion of particles with hydrodynamic interaction," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 74, no. 01, pp. 1–29, 1976.

[68] H. Eilers, "The viscosity of the emulsion of highly viscous substances as function of concentration," *Kolloid-Zeitschrift*, vol. 97, no. 3, pp. 313–321, 1941.

[69] M. Mooney, "The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles," *Journal of colloid science*, vol. 6, no. 2, pp. 162–170, 1951.

[70] I. M. Krieger and T. J. Dougherty, "A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres," *Transactions of the Society of Rheology*, vol. 3, no. 1, pp. 137–152, 1959.

[71] D. Quemada, "Rheology of concentrated disperse systems and minimum energy dissipation principle," *Rheologica Acta*, vol. 16, no. 1, pp. 82–94, 1977.

[72] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel, "Density relaxation in a vibrated granular material," *Physical review E*, vol. 51, no. 5, p. 3957, 1995.

[73] E. R. Nowak, J. B. Knight, E. Ben-Naim, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel, "Density fluctuations in vibrated granular materials," *Physical Review E*, vol. 57, no. 2, p. 1971, 1998.

[74] P. Philippe and D. Bideau, "Numerical model for granular compaction under vertical tapping," *Physical Review E*, vol. 63, no. 5, p. 051304, 2001.

[75] P. Philippe and D. Bideau, "Compaction dynamics of a granular medium under vertical tapping," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 60, no. 5, p. 677, 2002.

[76] P. Ribière, P. Richard, P. Philippe, D. Bideau, and R. Delannay, "On the existence of stationary states during granular compaction," *The European Physical Journal E : Soft Matter and Biological Physics*, vol. 22, no. 3, pp. 249–253, 2007.

[77] G. D'Anna and G. Grémaud, "The jamming route to the glass state in weakly perturbed granular media," *Nature*, vol. 413, no. 6854, pp. 407–409, 2001.

[78] G. D'Anna and G. Gremaud, "Vogel-fulcher-tammann–type diffusive slowdown in weakly perturbed granular media," *Physical review letters*, vol. 87, no. 25, p. 254302, 2001.

[79] G. D'Anna, P. Mayor, G. Gremaud, A. Barrat, and V. Loreto, "Extreme events-driven glassy behaviour in granular media," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 61, no. 1, p. 60, 2003.

[80] G. D'Anna and P. Mayor, "Hierarchically related processes and macroscopic emergence of fluctuations in weakly perturbed granular media," *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 325, no. 1, pp. 267–273, 2003.

[81] G. D'Anna, P. Mayor, A. Barrat, V. Loreto, and F. Nori, "Observing brownian motion in vibration-fluidized granular matter," *Nature*, vol. 424, no. 6951, pp. 909–912, 2003.

[82] P. Mayor, G. D'Anna, G. Gremaud, A. Barrat, and V. Loreto, "Mechanical spectroscopy of vibrated granular matter," *Materials Science and Engineering : A*, vol. 442, no. 1, pp. 256–262, 2006.

[83] J. A. Dijksman, G. H. Wortel, L. T. van Dellen, O. Dauchot, and M. van Hecke, "Jamming, yielding, and rheology of weakly vibrated granular media," *Physical review letters*, vol. 107, no. 10, p. 108303, 2011.

[84] G. H. Wortel, J. A. Dijksman, and M. van Hecke, "Rheology of weakly vibrated granular media," *Physical Review E*, vol. 89, no. 1, p. 012202, 2014.

[85] V. Zivkovic, M. J. Biggs, D. H. Glass, P. Pagliai, and A. Buts, "Particle dynamics in a dense vibrated fluidized bed as revealed by diffusing wave spectroscopy," *Powder Technology*, vol. 182, no. 2, pp. 192–201, 2008.

[86] V. Zivkovic, M. J. Biggs, D. H. Glass, and L. Xie, "Particle dynamics and granular temperatures in dense fluidized beds as revealed by diffusing wave spectroscopy," *Advanced Powder Technology*, vol. 20, no. 3, pp. 227–233, 2009.

[87] K. Kim, J. K. Moon, J. J. Park, H. K. Kim, and H. K. Pak, "Jamming transition in a highly dense granular system under vertical vibration," *Physical Review E*, vol. 72, no. 1, p. 011302, 2005.

[88] V. Zivkovic, M. J. Biggs, and D. H. Glass, "Particle dynamics in a vibrated submerged granular bed as revealed by diffusing wave spectroscopy," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 42, no. 24, p. 245404, 2009.

[89] A. Kabla and G. Debrégeas, "Contact dynamics in a gently vibrated granular pile," *Physical review letters*, vol. 92, no. 3, p. 035501, 2004.

[90] C. Hanotin, S. K. De Richter, P. Marchal, L. J. Michot, and C. Baravian, "Vibration-induced liquefaction of granular suspensions," *Physical review letters*, vol. 108, no. 19, p. 198301, 2012.

[91] C. Hanotin, S. K. de Richter, L. J. Michot, and P. Marchal, "Viscoelasticity of granular suspensions." soumis à *Journal of Rheology* (2014).

[92] C. Hanotin, S. K. de Richter, L. J. Michot, and P. Marchal, "Rheological behavior of vibrated bimodal granular suspensions : a free volume approach." soumis à *Rheologica Acta* (2014).

[93] P. Marchal, *Viscoélasticité des milieux granulaires denses.* PhD thesis, Université de Lorraine, 2013.

[94] L. Choplin, P. Marchal, and N. Smirani, "System and method for rheological characterization of granular materials," Dec. 6 2005. US Patent 6,971,262.

[95] L. F. Madariaga, P. Marchal, C. Castel, E. Favre, and L. Choplin, "Characterization of impregnated particles via powder rheology," *Powder Technology*, vol. 196, no. 2, pp. 222–228, 2009.

[96] P. Mayor, G. D'Anna, A. Barrat, and V. Loreto, "Observing brownian motion and measuring temperatures in vibration-fluidized granular matter," *New Journal of Physics*, vol. 7, no. 1, p. 28, 2005.

[97] A. Aït-Kadi, P. Marchal, L. Choplin, A.-S. Chrissemant, and M. Bousmina, "Quantitative analysis of mixer-type rheometers using the couette analogy," *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol. 80, no. 6, pp. 1166–1174, 2002.

[98] L. Choplin, P. Marchal, C. Baravian, and D. Langevin, "Rhéologie et produits formulés complexes," *Tech. Ing*, 2010.

[99] D. Quemada, "Rheological modelling of complex fluids. i. the concept of effective volume fraction revisited," *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 1, no. 01, pp. 119–127, 1998.

[100] S. Herminghaus, *Wet granular matter : a truly complex fluid.* World Scientific, 2013.

[101] H. Hinrichsen and D. E. Wolf, *The physics of granular media.* John Wiley & Sons, 2006.

[102] A. Lemaître, J.-N. Roux, and F. Chevoir, "What do dry granular flows tell us about dense non-brownian suspension rheology ?," *Rheologica acta*, vol. 48, no. 8, pp. 925–942, 2009.

[103] M. Pailha and O. Pouliquen, "A two-phase flow description of the initiation of underwater granular avalanches," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 633, pp. 115–135, 2009.

[104] C. Hanotin, P. Marchal, L. J. Michot, C. Baravian, and S. K. de Richter, "Dynamics of vibrated granular suspensions probed by mechanical spectroscopy and diffusing wave spectroscopy measurements," *Soft Matter*, vol. 9, no. 39, pp. 9352–9360, 2013.

[105] V. Y. Zaitsev, P. Richard, R. Delannay, V. Tournat, and V. Gusev, "Pre-avalanche structural rearrangements in the bulk of granular medium : Experimental evidence," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 83, no. 6, p. 64003, 2008.

[106] S. K. De Richter, G. Le Caër, and R. Delannay, "Dynamics of rearrangements during inclination of granular packings : the avalanche precursor regime," *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, vol. 2012, no. 04, p. P04013, 2012.

[107] T. Travers, M. Ammi, D. Bideau, A. Gervois, J. Messager, and J. Troadec, "Uniaxial compression of 2d packings of cylinders. effects of weak disorder," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 4, no. 3, p. 329, 1987.

[108] M. Ammi, D. Bideau, and J. P. Troadec, "Geometrical structure of disordered packings of regular polygons ; comparison with disc packings structures," *J. Phys. D : Appl. Phys.*, vol. 20, p. 424, 1987.

[109] P. Dantu, "Etude statistique des forces intergranulaires dans un milieu pulverulent," *Géotechnique*, vol. 18, no. 1, pp. 50–55, 1968.

[110] D. M. Mueth, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel, "Force distribution in a granular medium," *Physical Review E*, vol. 57, no. 3, p. 3164, 1998.

[111] F. Radjai, D. E. Wolf, M. Jean, and J.-J. Moreau, "Bimodal character of stress transmission in granular packings," *Physical review letters*, vol. 80, pp. 61–64, 1998.

[112] S. Deboeuf, O. Dauchot, L. Staron, A. Mangeney, and J.-P. Vilotte, "Memory of the unjamming transition during cyclic tiltings of a granular pile," *Physical Review E*, vol. 72, no. 5, p. 051305, 2005.

[113] C. Ancey, P. Coussot, and P. Evesque, "A theoretical framework for granular suspensions in a steady simple shear flow," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 43, no. 6, pp. 1673–1699, 1999.

[114] P. Mills and P. Snabre, "Apparent viscosity and particle pressure of a concentrated suspension of non-brownian hard spheres near the jamming transition," *The European Physical Journal E*, vol. 30, no. 3, pp. 309–316, 2009.

[115] P. Mills, D. Loggia, and M. Tixier, "Model for a stationary dense granular flow along an inclined wall," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 45, no. 6, p. 733, 1999.

[116] P. Mills, M. Tixier, and D. Loggia, "Influence of roughness and dilatancy for dense granular flow along an inclined wall," *The European Physical Journal E*, vol. 1, no. 1, pp. 5–8, 2000.

[117] P. Mills, P. Rognon, and F. Chevoir, "Rheology and structure of granular materials near the jamming transition," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 81, no. 6, p. 64005, 2008.

[118] P. Marchal, C. Hanotin, L. Michot, and S. K. De Richter, "Two-state model to describe the rheological behavior of vibrated granular matter," *Physical Review E*, vol. 88, no. 1, p. 012207, 2013.

[119] V. Tournat, V. Gusev, V. Y. Zaitsev, and B. Castagnede, "Acoustic second-harmonic generation with shear to longitudinal mode conversion in granular media," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 66, no. 6, p. 798, 2004.

[120] V. Tournat, V. Zaitsev, V. Gusev, V. Nazarov, P. Béquin, and B. Castagnède, "Probing weak forces in granular media through nonlinear dynamic dilatancy : clapping contacts and polarization anisotropy," *Physical review letters*, vol. 92, no. 8, p. 085502, 2004.

[121] R. B. Bird, R. C. Armstrong, and O. Hassager, "Dynamics of polymeric liquids. volume 1 : fluid mechanics," *A Wiley-Interscience Publication, John Wiley & Sons*, 1987.

[122] V. B. Nguyen, T. Darnige, A. Bruand, E. Clement, *et al.*, "Creep and fluidity of a real granular packing near jamming," *Physical review letters*, vol. 107, no. 13, p. 138303, 2011.

[123] E. Wandersman and M. van Hecke, "Nonlocal granular rheology : Role of pressure and anisotropy," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 105, no. 2, p. 24002, 2014.

[124] A. Lemaître, "Rearrangements and dilatancy for sheared dense materials," *Physical review letters*, vol. 89, no. 19, p. 195503, 2002.

[125] A. Lemaître, "Origin of a repose angle : kinetics of rearrangement for granular materials," *Physical review letters*, vol. 89, no. 6, p. 064303, 2002.

[126] K. H. Sweeny and R. D. Geckler, "The rheology of suspensions," *Journal of Applied Physics*, vol. 25, no. 9, pp. 1135–1144, 1954.

[127] G. Eveson, "Rheology of disperse systems," *Pergamon, London, England*, 1959.

[128] R. Farris, "Prediction of the viscosity of multimodal suspensions from unimodal viscosity data," *Journal of Rheology*, vol. 12, p. 281, 1968.

[129] A. Poslinski, M. Ryan, R. Gupta, S. Seshadri, and F. Frechette, "Rheological behavior of filled polymeric systems ii. the effect of a bimodal size distribution of particulates," *Journal of Rheology*, vol. 32, p. 751, 1988.

[130] R. Storms, B. Ramarao, and R. Weiland, "Low shear rate viscosity of bimodally dispersed suspensions," *Powder technology*, vol. 63, no. 3, pp. 247–259, 1990.

[131] A. P. Shapiro and R. F. Probstein, "Random packings of spheres and fluidity limits of monodisperse and bidisperse suspensions," *Physical review letters*, vol. 68, no. 9, p. 1422, 1992.

[132] C. Logos and Q. Nguyen, "Effect of particle size on the flow properties of a south australian coal-water slurry," *Powder technology*, vol. 88, no. 1, pp. 55–58, 1996.

[133] M. H. Cohen and D. Turnbull, "Molecular transport in liquids and glasses," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 31, p. 1164, 1959.

[134] A. K. Doolittle, "Studies in newtonian flow. ii. the dependence of the viscosity of liquids on free-space," *Journal of Applied Physics*, vol. 22, no. 12, pp. 1471–1475, 1951.

[135] J. D. Ferry, *Viscoelastic properties of polymers*. Wiley New York, 1980.

[136] P. Macedo and T. Litovitz, "On the relative roles of free volume and activation energy in the viscosity of liquids," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 42, p. 245, 1965.

[137] T. Lewis and L. Nielsen, "Viscosity of dispersed and aggregated suspensions of spheres," *Journal of Rheology*, vol. 12, p. 421, 1968.

[138] C. d. de Kruif, E. Van Iersel, A. Vrij, and W. Russel, "Hard sphere colloidal dispersions : Viscosity as a function of shear rate and volume fraction," *The Journal of chemical physics*, vol. 83, p. 4717, 1985.

[139] C. Chang and R. L. Powell, "Effect of particle size distributions on the rheology of concentrated bimodal suspensions," *Journal of Rheology*, vol. 38, p. 85, 1994.

[140] N. Ouchiyama and T. Tanaka, "Porosity estimation for random packings of spherical particles," *Industrial & engineering chemistry fundamentals*, vol. 23, no. 4, pp. 490–493, 1984.

[141] A. Shauly, A. Wachs, and A. Nir, "Shear-induced particle migration in a polydisperse concentrated suspension," *Journal of Rheology*, vol. 42, p. 1329, 1998.

[142] R. McGeary, "Mechanical packing of spherical particles," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 44, no. 10, pp. 513–522, 1961.

[143] B. Bournonville, P. Coussot, and X. Chateau, "Modification du modèle de farris pour la prise en compte des interactions géométriques d'un mélange polydisperse de particules," *Rheologie*, vol. 7, p. 1, 2004.

[144] F. Qi and R. I. Tanner, "Random close packing and relative viscosity of multimodal suspensions," *Rheologica acta*, vol. 51, no. 4, pp. 289–302, 2012.

[145] D. He and N. N. Ekere, "Viscosity of concentrated noncolloidal bidisperse suspensions," *Rheologica acta*, vol. 40, no. 6, pp. 591–598, 2001.

[146] M. O. Toivakka and D. E. Eklund, "Prediction of suspension rheology through particle motion simulation," *Tappi journal*, vol. 79, no. 1, pp. 211–222, 1996.

[147] R. S. Farr and R. D. Groot, "Close packing density of polydisperse hard spheres," *The Journal of chemical physics*, vol. 131, p. 244104, 2009.

[148] I. Biazzo, F. Caltagirone, G. Parisi, and F. Zamponi, "Theory of amorphous packings of binary mixtures of hard spheres," *Physical review letters*, vol. 102, no. 19, p. 195701, 2009.

[149] A. Clarke and J. Wiley, "Numerical simulation of the dense random packing of a binary mixture of hard spheres : Amorphous metals," *Physical Review B*, vol. 35, no. 14, p. 7350, 1987.

[150] V. Zivkovic, M. Biggs, and D. Glass, "Scaling of granular temperature in a vibrated granular bed," *Physical Review E*, vol. 83, no. 3, p. 031308, 2011.

[151] N. Menon and D. J. Durian, "Diffusing-wave spectroscopy of dynamics in a three-dimensional granular flow," *Science*, vol. 275, no. 5308, pp. 1920–1922, 1997.

[152] S. Y. You and H. K. Pak, "Study of the short-time dynamics of a thick and highly dense vibro-fluidized granular system by using diffusing wave spectroscopy," *JOURNAL-KOREAN PHYSICAL SOCIETY*, vol. 38, no. 5, pp. 577–581, 2001.

[153] A. Duri, *Dynamique spatialement et temporellement hétérogène dans la relaxation lente de la matière molle vitreuse.* PhD thesis, Université Montpellier II-Sciences et Techniques du Languedoc, 2006.

[154] D. A. Weitz and D. J. Pine, "Diffusing-wave spectroscopy," *Dynamic light scattering*, p. 652, 1993.

[155] B. Chu, *Laser light scattering.* Elsevier, 1974.

[156] L. Rojas-Ochoa, S. Romer, F. Scheffold, and P. Schurtenberger, "Diffusing wave spectroscopy

and small-angle neutron scattering from concentrated colloidal suspensions," *Physical Review E*, vol. 65, no. 5, p. 051403, 2002.

[157] D. Pine, D. Weitz, P. Chaikin, and E. Herbolzheimer, "Diffusing wave spectroscopy," *Physical Review Letters*, vol. 60, no. 12, p. 1134, 1988.

[158] A. P. Wong and P. Wiltzius, "Dynamic light scattering with a ccd camera," *Review of Scientific Instruments*, vol. 64, no. 9, pp. 2547–2549, 1993.

[159] V. Viasnoff, F. Lequeux, and D. Pine, "Multispeckle diffusing-wave spectroscopy : a tool to study slow relaxation and time-dependent dynamics," *Review of Scientific Instruments*, vol. 73, no. 6, pp. 2336–2344, 2002.

[160] S. F. Edwards and R. Oakeshott, "Theory of powders," *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 157, no. 3, pp. 1080–1090, 1989.

[161] M. Nicodemi, A. Coniglio, and H. J. Herrmann, "Frustration and slow dynamics of granular packings," *Physical Review E*, vol. 55, no. 4, pp. 3962–3969, 1997.

[162] J. Kurchan, "Emergence of macroscopic temperatures in systems that are not thermodynamical microscopically : towards a thermodynamical description of slow granular rheology," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 12, no. 29, p. 6611, 2000.

[163] E. Clement and J. Rajchenbach, "Fluidization of a bidimensional powder," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 16, no. 2, p. 133, 1991.

[164] D. I. Goldman and H. L. Swinney, "Signatures of glass formation in a fluidized bed of hard spheres," *Physical review letters*, vol. 96, no. 14, p. 145702, 2006.

[165] P. Sollich, F. Lequeux, P. Hébraud, and M. E. Cates, "Rheology of soft glassy materials," *Physical review letters*, vol. 78, no. 10, p. 2020, 1997.

[166] M. Ediger, C. Angell, and S. R. Nagel, "Supercooled liquids and glasses," *The journal of physical chemistry*, vol. 100, no. 31, pp. 13200–13212, 1996.

[167] E. R. Weeks, J. C. Crocker, A. C. Levitt, A. Schofield, and D. A. Weitz, "Three-dimensional direct imaging of structural relaxation near the colloidal glass transition," *Science*, vol. 287, no. 5453, pp. 627–631, 2000.

[168] E. R. Weeks and D. Weitz, "Properties of cage rearrangements observed near the colloidal glass transition," *Physical review letters*, vol. 89, no. 9, p. 095704, 2002.

[169] O. Pouliquen, M. Belzons, and M. Nicolas, "Fluctuating particle motion during shear induced granular compaction," *Physical review letters*, vol. 91, no. 1, p. 014301, 2003.

[170] G. Marty and O. Dauchot, "Subdiffusion and cage effect in a sheared granular material," *Physical review letters*, vol. 94, no. 1, p. 015701, 2005.

[171] A. R. Abate and D. J. Durian, "Approach to jamming in an air-fluidized granular bed," *Physical Review E*, vol. 74, no. 3, p. 031308, 2006.

[172] P. Coussot, H. Tabuteau, X. Chateau, L. Tocquer, and G. Ovarlez, "Aging and solid or liquid behavior in pastes," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 50, no. 6, pp. 975–994, 2006.

[173] L. Cipelletti and D. Weitz, "Ultralow-angle dynamic light scattering with a charge coupled device camera based multispeckle, multitau correlator," *Review of Scientific Instruments*, vol. 70, no. 8, pp. 3214–3221, 1999.

[174] G. Caballero, E. Kolb, A. Lindner, J. Lanuza, and E. Clément, "Experimental investigation of granular dynamics close to the jamming transition," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 17, no. 24, p. S2503, 2005.

[175] N. Menon and D. J. Durian, "Particle motions in a gas-fluidized bed of sand," *Physical Review Letters*, vol. 79, no. 18, p. 3407, 1997.

[176] M. J. Biggs, D. Glass, L. Xie, V. Zivkovic, A. Buts, and M. C. Kounders, "Granular temperature in a gas fluidized bed," *Granular Matter*, vol. 10, no. 2, pp. 63–73, 2008.

[177] P.-A. Lemieux and D. Durian, "From avalanches to fluid flow : a continuous picture of grain dynamics down a heap," *Physical review letters*, vol. 85, no. 20, p. 4273, 2000.

[178] P. Dixon and D. Durian, "Speckle visibility spectroscopy and variable granular fluidization," *Physical review letters*, vol. 90, no. 18, p. 184302, 2003.

[179] D. Pine, D. Weitz, J. Zhu, and E. Herbolzheimer, "Diffusing-wave spectroscopy : dynamic light scattering in the multiple scattering limit," *Journal de Physique*, vol. 51, no. 18, pp. 2101–2127, 1990.

[180] Z. Sadjadi and M. Miri, "Diffusive transport of light in two-dimensional granular materials," *Physical Review E*, vol. 84, no. 5, p. 051305, 2011.

[181] D. Durian, D. Weitz, and D. Pine, "Multiple light-scattering probes of foam structure and dynamics," *Science*, vol. 252, no. 5006, pp. 686–688, 1991.

[182] P. Richard, P. Philippe, F. Barbe, S. Bourlès, X. Thibault, and D. Bideau, "Analysis by x-ray microtomography of a granular packing undergoing compaction," *Physical Review E*, vol. 68, no. 2, p. 020301, 2003.

[183] M. Di Michiel, J. M. Merino, D. Fernandez-Carreiras, T. Buslaps, V. Honkimäki, P. Falus, T. Martins, and O. Svensson, "Fast microtomography using high energy synchrotron radiation," *Review of Scientific Instruments*, vol. 76, no. 4, p. 043702, 2005.

[184] M. Scheel, R. Seemann, M. Brinkmann, M. Di Michiel, A. Sheppard, B. Breidenbach, and S. Herminghaus, "Morphological clues to wet granular pile stability," *Nature materials*, vol. 7, no. 3, pp. 189–193, 2008.

[185] R. Mokso, F. Marone, D. Haberthür, J. Schittny, G. Mikuljan, A. Isenegger, and M. Stampanoni, "Following dynamic processes by x-ray tomographic microscopy with sub-second temporal resolution," in *THE 10TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON X-RAY MICROSCOPY*, vol. 1365, pp. 38–41, AIP Publishing, 2011.

[186] L. Xie, M. J. Biggs, D. Glass, A. McLeod, S. Egelhaaf, and G. Petekidis, "Granular temperature distribution in a gas fluidized bed of hollow microparticles prior to onset of bubbling," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 74, no. 2, p. 268, 2006.

[187] S. Ogawa, "Multitemperature theory of granular materials," 1978.

[188] S. Ogawa, A. Umemura, and N. Oshima, "On the equations of fully fluidized granular materials," *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik ZAMP*, vol. 31, no. 4, pp. 483–493, 1980.

[189] T. G. Mason and D. Weitz, "Optical measurements of frequency-dependent linear viscoelastic moduli of complex fluids," *Physical review letters*, vol. 74, no. 7, p. 1250, 1995.

[190] T. G. Mason, "Estimating the viscoelastic moduli of complex fluids using the generalized stokes–einstein equation," *Rheologica Acta*, vol. 39, no. 4, pp. 371–378, 2000.

[191] R. Candelier and O. Dauchot, "Journey of an intruder through the fluidization and jamming transitions of a dense granular media," *Physical Review E*, vol. 81, no. 1, p. 011304, 2010.

[192] R. Harich, T. Darnige, E. Kolb, and E. Clément, "Intruder mobility in a vibrated granular packing," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 96, no. 5, p. 54003, 2011.

[193] E. M. Haacke, R. W. Brown, M. R. Thompson, and R. Venkatesan, "Magnetic resonance imaging," *Physical principles and sequence design*, 1999.

[194] M. A. Bernstein, K. F. King, and X. J. Zhou, *Handbook of MRI pulse sequences.* Elsevier, 2004.

[195] M. Décorps, *Imagerie de résonance magnétique.* EDP Sciences, 2012.

+

Annexe A

Vibration-induced Liquefaction of Granular Suspensions

Caroline Hanotin, Sébastien Kiesgen de Richter, Philippe Marchal, Laurent Michot & Christophe Baravian

Physical Review Letters, **108**, 198301 (2012)

Vibration-induced Liquefaction of Granular Suspensions

C. Hanotin,[1,2,*] S. Kiesgen de Richter,[1,2] P. Marchal,[3,4] L. J. Michot,[5,6] and C. Baravian[1,2,†]

[1]*Université de Lorraine, Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA), UMR 7563, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54500, France*

[2]*CNRS, LEMTA, UMR 7563, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54500, France*

[3]*Université de Lorraine, Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP-GEMICO), UPR 3349, Nancy, F-54000, France*

[4]*CNRS, LRGP-GEMICO, UPR 3349, Nancy, F-54000, France*

[5]*Université de Lorraine, Laboratoire Environnement et Minéralurgie (LEM), UMR 7569, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54500, France*

[6]*CNRS, LEM, UMR 7569, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54500, France*

(Received 28 November 2011; published 7 May 2012)

We investigate the mechanical behavior of granular suspensions subjected to coupled vibrations and shear. At high shear stress, whatever the mechanical vibration energy and bead size, the system behaves like a homogeneous suspension of hard spheres. At low shear stress, in addition to a dependence on bead size, vibration energy drastically influences the viscosity of the material that can decrease by more than 2 orders of magnitude. All experiments can be rationalized by introducing a hydrodynamical Peclet number defined as the ratio between the lubrication stress induced by vibrations and granular pressure. The behavior of vibrated wet and dry granular materials can then be unified by assimilating the Hookean stress in dry media to the lubrication stress in suspensions.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.198301 PACS numbers: 83.80.Hj, 47.57.Gc, 47.57.Qk, 83.80.Fg

The mechanical properties of suspensions of non-Brownian particles, i.e., with dimensions above a few microns, control numerous natural phenomena such as mudslides, avalanches, and debris flows. Such suspensions are, in addition, of prime importance in a wide range of industrial applications, particularly in civil engineering. Still, the physics of such suspensions is not totally clear, and features such as yield stress [1,2], shear localization [3], shear thickening [4], or particles migration [5] remain highly debated.

In contrast with recent work on the flow of isodense suspensions of polystyrene beads in Newtonian fluids subjected to shear flow in a Couette cell [6], the present Letter focuses on concentrated gravitational suspensions, i.e., suspensions where particles are significantly denser than the suspending fluid [7–9]. Although such a situation is relevant for understanding natural systems, a major difficulty associated with such studies is that the initial state of the suspension at rest cannot be properly defined as the system may be jammed far from equilibrium. As a consequence, the fine details of the low shear regime remain poorly understood as well as the mechanisms of the jamming-unjamming transition operating when the suspension starts flowing. To overcome such a drawback, we analyze the flow behavior of our gravitational suspensions under coupled vibrations and shear. Indeed, such a combination has proven extremely relevant for studying dry granular media [10,11] in a wide range of shear. At low shear, dynamics appear to be controlled by vibrations, which yields a Newtonian behavior where granular reorganization is Brownian-like [10,12,13], whereas at high shear, dynamics can be described by a Coulombian law, where the main interactions between grains are frictional.

In the present Letter, we then investigate in detail the flow behavior of gravitational suspensions subjected to coupled vibrations and shear. We show that applying any finite amplitude vibration suppresses the yield stress of gravitational suspensions that, under vibration, behave as viscous fluids. Their viscosity varies with particle size, suspending fluid viscosity, and vibration amplitude and frequency. All variations can be rationalized by introducing a Peclet number defined as the ratio between local lubrication and granular pressure.

We first analyze the rheological behavior of a dense gravitational suspension (volume fraction $\phi \approx 0.61$) composed of noncolloidal 100 μm monodisperse spherical glass beads (Whitehouse Scientist, $\rho_p \approx 2400\ \mathrm{kg/m^3}$) immersed in a Newtonian fluid (Emkarox—water mixture $\eta_f = 67.8\ \mathrm{mPa \cdot s}$, $\rho_f \approx 1032\ \mathrm{kg/m^3}$) subjected to simultaneous shear and vibrations and compare it to the behavior of the same dry beads. For this, we use a stress-imposed rheometer (AR 2000, TA Instruments) coupled with a vibration exciter [10]. The geometry used is a four blades vane device (10 mm radius; 30 mm length) installed into a cylindrical baffled cell (25 mm radius; 5 mm baffle width). The characterization cell is analogous to a virtual Couette cell with an annular gap equal to 10 mm. The distance between the bottom of the vane and the bottom of the cell is also equal to 10 mm. Experiments were carried out at imposed shear stress (from 1 to 10^3 Pa) under sinusoidal vibrations. The measured shear rate ranges from 10^{-3} to $4 \times 10^2\ \mathrm{s^{-1}}$. All data points were obtained at steady state. In such a system, the mechanical vibration stress σ_v can be defined as the mechanical energy per unit volume of a harmonic oscillator of the same mass as the

 © 2012 American Physical Society

sample [10], hence $\sigma_v = 1/2\rho A^2(2\pi f)^2$ where ρ is the density of the system (kg/m^3), and A and f are the amplitude and frequency of vibrations, respectively. The vibration amplitude and frequency used vary from 20 to 400 μm and from 10 to 80 Hz, respectively [14].

Figure 1 presents the evolution of the sample viscosity, η, as a function of the applied shear stress, σ, for various values of σ_v for the dry [Fig. 1(a)] and wet [Fig. 1(b)] cases. In the dry case, for $\sigma_v = 0$ [filled symbols in Fig. 1(a)], σ remains constant for all imposed shear rates. This regime is a Coulombian frictional one as shown by Marchal *et al.* [10]. The frictional stress, σ_f, is thus given by Coulomb's law, $\sigma_f = \mu P_g$, where P_g is the average granular pressure defined by [10]:

$$P_g = \Delta\rho\phi g z, \tag{1}$$

where $\Delta\rho$ is the relative density of the beads and fluids, ϕ the volume fraction, g the gravitational constant 9.81 m $\cdot$ s^{-2}, and z is an average height ($z = 0.025$ m) [10]. In the present case, for $\phi \approx 0.62$ and $\mu \approx 0.5$ [10], the application of Coulomb's law yields $\sigma_f = 182 \pm 41$ Pa, in agreement with the experimental value. For wet granular media in the absence of vibration [filled symbols in Fig. 1(b)], a typical yield stress behavior is observed in agreement with previous results [6,8,9]. Application of Eq. (1) yields a value of 103 ± 22 Pa, in agreement with experimental results. The lower value compared to the dry case is directly related to the density difference between air and Emkarox solution [15].

σ_f represents a clear limit between two domains. For $\sigma \geq \sigma_f$, all viscosity curves follow the nonvibrated case whatever the mechanical vibration energy. In this regime, the flow behavior of the suspension is then fully controlled by shear stress, and the system behaves as classical Brownian (e.g. [16]) or non-Brownian suspensions [6,9,17]. To further evidence such a statement, we analyze the dependence of η_{300}, the suspension viscosity measured for an applied shear stress of 300 Pa, on suspending fluid viscosity η_f [18], bead size D, and volume fraction ϕ. Figure 2(a) confirms that η_{300} is proportional to η_f and independent of bead size for sizes ranging between 49 and 530 μm. Figure 2(b) shows that, in the case of 100 μm beads, the volume fraction variation of viscosity is well accounted for by Quemada's law $\eta = \eta_f(1 - \frac{\phi}{\phi^*})^{-2}$ [19] where ϕ^* is the maximum packing fraction. In the case presented here, $\phi^* = 0.68$, i.e., an intermediate value between ϕ^* at rest (0.63) and ϕ^* under infinite shear (0.72) [20,21]. In that regime, the system is controlled by the

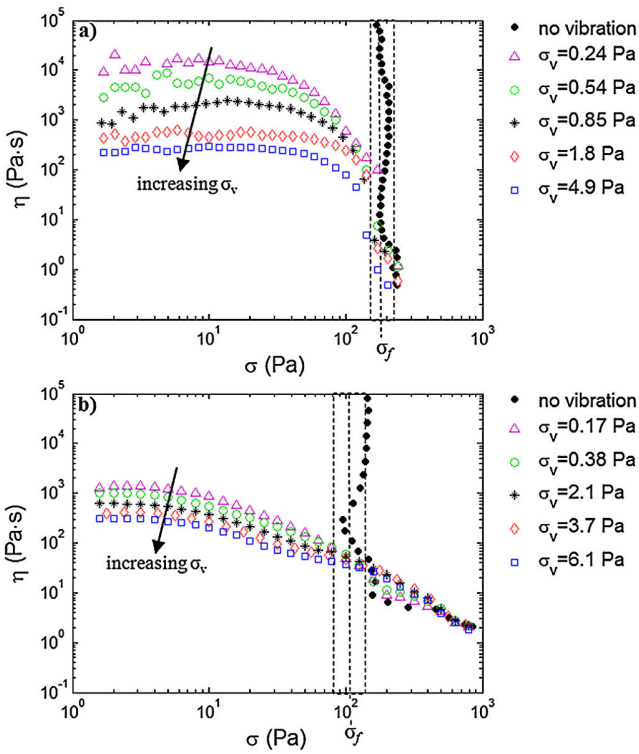


FIG. 1 (color online). Viscosity (η) versus shear stress (σ), for various values of vibration stress (σ_v). (a) 100 μm dry glass beads, $\phi \approx 0.62$ [10]. (b) 100 μm glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture, $\phi \approx 0.61$. Experiments were carried out at imposed shear stress (from 1 to 10^3 Pa), except for the curve at $\sigma_v = 0$ (filled symbols) that was performed at imposed shear rate (from 10^{-3} to 4×10^2 s^{-1}). The dotted rectangle represents the range of values obtained for the calculation of the frictional stress σ_f by Coulomb's law.

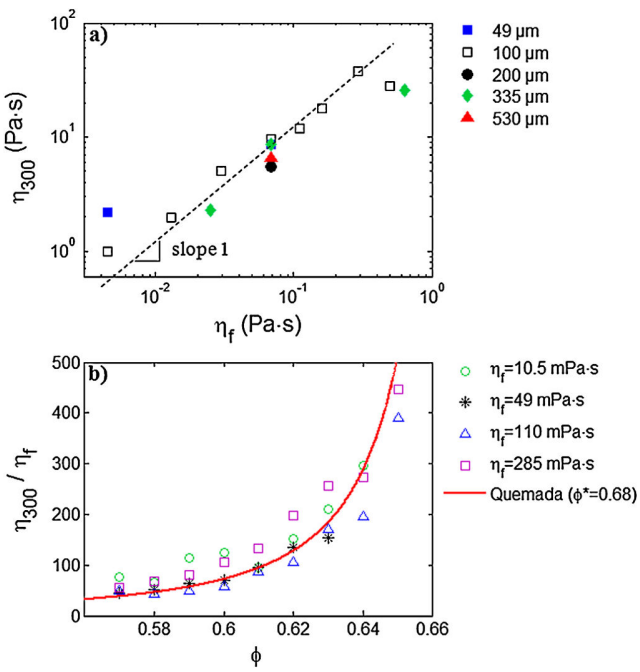


FIG. 2 (color online). Glass beads immersed in various Emkarox-water mixtures. (a) High shear viscosity (η_{300}) versus interstitial fluid viscosity (η_f), for various values of bead size, $\phi \approx 0.61$. (b) Evolution with volume fraction, ϕ, of η_{300}/η_f, $D = 100$ μm.

balance between cohesion stress, σ_f and applied shear stress, σ. The ratio of the two quantities can be used to define a viscous Peclet number, $\mathrm{Pe}_{\mathrm{shear}}$, that scales as $\eta_f\dot{\gamma}/\sigma_f$. Such a quantity is analogous to the Leighton number introduced by Coussot and coworkers [8,9] to describe the transition from a frictional to a viscous regime in sheared dense suspensions and also to the viscous number introduced by Cassar *et al.* [22] to describe the rheological behavior of submarine avalanches. In contrast, the behavior observed for $\sigma \leq \sigma_f$ is much richer. Indeed, the suspension loses its yield stress and a viscosity plateau appears. This constant viscosity evidences mesoscopic motion in the system. The value of η at the plateau depends on both vibration amplitude and frequency. The use of the vibration stress rationalizes all effects, higher stress leading to lower viscosity (Fig. 1). Such a behavior can be interpreted as resulting from an increase in particle mobility that, for both dry and wet materials, leads to lower cohesion. However, the nature of interactions in both cases is different as shown by the evolution of η_0, the viscosity at the plateau, with bead size. As shown in Fig. 3(a), in the dry case, the low shear viscosity plateau is rather independent of size, whereas a clear size dependence appears in the saturated suspension [Fig. 3(b)], higher size leading to higher viscosity. For dry materials, as previously shown [10], local interactions can be properly described on the basis of a Hookean approach, $\sigma_{\mathrm{dry}} = G\gamma$ where G is an elastic modulus and γ the deformation. In the saturated suspension, the local interaction between two beads is rather controlled by lubrication that can be dimensionally expressed as

$$\sigma_{\mathrm{lub}} \propto \frac{\eta_f A(2\pi f)}{D}. \tag{2}$$

According to such an interpretation, in addition to size effects, changes in the viscosity of the suspending fluid should also have a direct influence on the value of η_0. To test for such an assumption, we then used the previously mentioned Emkarox-water mixtures. As shown in Fig. 4(a), at low shear, for constant vibration stress, an increase in η_f leads to a significant decrease in the plateau viscosity η_0. Figure 4(b) summarizes all these effects by plotting η_0 as a function of η_f for various sizes and vibration stresses. In agreement with Eq. (2), an increase

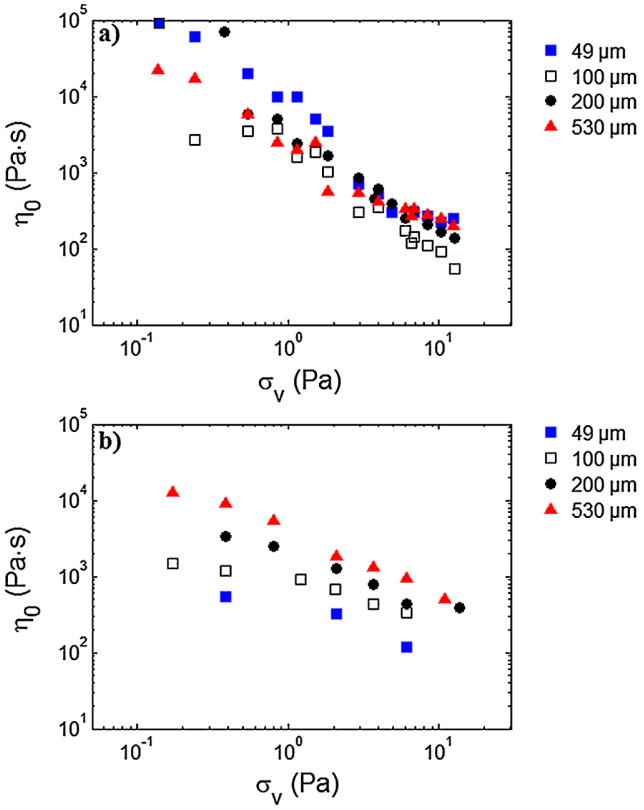


FIG. 3 (color online). Low shear viscosity plateau (η_0) versus vibration stress (σ_v), for various values of bead size. (a) Dry glass beads, $\phi \approx 0.62$ [10]. (b) Glass beads immersed in a 67.8 mPa.s Emkarox-water mixture, $\phi \approx 0.61$.

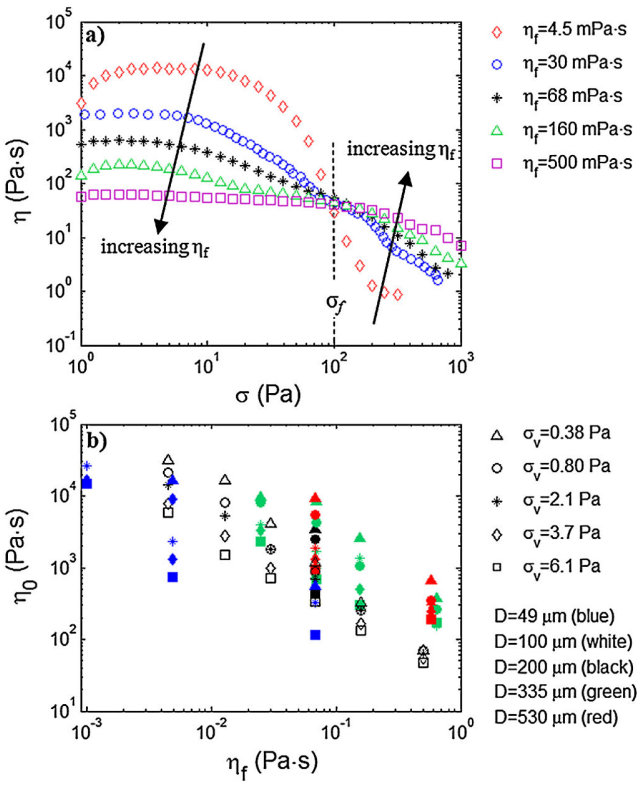


FIG. 4 (color online). (a) Viscosity (η) versus shear stress (σ), for various values of interstitial fluid viscosity, for 100 μm glass beads immersed in various Emkarox-water mixtures, $\phi \approx 0.61$, $\sigma_v = 6.1$ Pa. (b) Low shear viscosity plateau (η_0) versus interstitial fluid viscosity (η_f), for various values of bead size and vibration stress, $\phi \approx 0.61$.

in either vibration energy or fluid viscosity or a decrease in particle size leads to a decrease in η_0.

In that context, the low shear rheological behavior of gravitational suspensions is governed by the competition between the granular pressure P_g [Eq. (1)], that ensures the internal cohesion of the system and the lubrication stress, $\sigma_{\rm lub}$ [Eq. (2)]. This stress provides more degrees of freedom to the particles in the same way as the shear stress for values larger than σ_f. It is then relevant to define a lubrication Peclet number, $\mathrm{Pe}_{\rm lub}$ that scales as $\frac{\eta_f A(2\pi f)}{D\sigma_f}$. In energetic terms, this Peclet number compares the mechanical vibration energy transmitted through viscous forces to the internal energy of the system. Figure 5 displays a plot of η_0 as a function of $\mathrm{Pe}_{\rm lub}$. All points of Fig. 4(b) fall onto a master curve with a slope -1, extending over more than two decades in both $\mathrm{Pe}_{\rm lub}$ and η_0, which validates the proposed approach [23].

Such a result has, to our knowledge, never been observed in gravitational suspensions and opens new perspectives in the study of granular media. In particular, the influence of vibrations on gravitational suspensions rheology may provide crucial information for understanding natural phenomena such as landslide triggering through earthquakes. In fundamental terms, the fact that any finite amplitude vibration is able to fluidize a jammed system may shed new light on the jamming-unjamming transition. Indeed, it challenges the classical assertion that considers that unjamming occurs only when the system is provided with an energy larger than its cohesive energy. In that context, a quantitative interpretation of the -1 decay observed in Fig. 5 clearly deserves deeper investigation. Indeed, if vibration increases the degrees of freedom of the particles, an exponential behavior would have been expected, by analogy with studies on viscosity of molecular liquids [24]. The unexpected trend observed in the present Letter strongly suggests that the analogy between temperature and vibration is not trivial. It is then of prime importance to study in detail how vibration affects particles reorganization at both the local and semilocal scale as shown by recent experiments on load-bearing bridges [25].

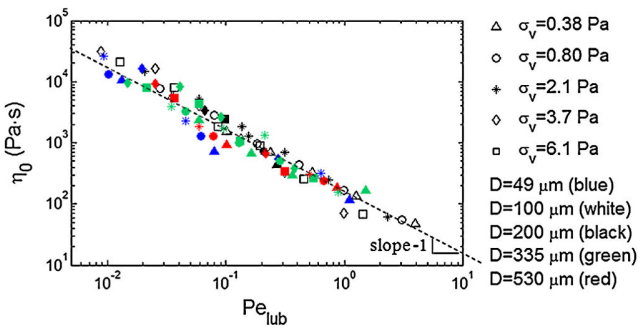


FIG. 5 (color online). Low shear viscosity plateau (η_0) versus Peclet number ($\mathrm{Pe}_{\rm lub}$), for various values of bead size, vibration stress, and suspending fluid viscosity.

It would be particularly relevant to experimentally investigate the dynamics of particles under increasing vibration energy. This could be achieved by carrying out fast tomography experiments such as those recently developed in synchrotron facilities or dynamic light scattering experiments currently under development.

*caroline.hanotin@univ-lorraine.fr
†christophe.baravian@univ-lorraine.fr

[1] A. Fall, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn, Phys. Rev. Lett. **103**, 178301 (2009).
[2] G. Ovarlez, F. Bertrand, and S. Rodts, J. Rheol. **50**, 259 (2006).
[3] J. F. Brady and J. F. Morris, J. Fluid Mech. **348**, 103 (1997).
[4] A. Fall, N. Huang, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn, Phys. Rev. Lett. **100**, 018301 (2008).
[5] J. F. Morris and F. Boulay, J. Rheol. **43**, 1213 (1999).
[6] N. Huang, G. Ovarlez, F. Bertrand, S. Rodts, P. Coussot, and D. Bonn, Phys. Rev. Lett. **94**, 028301 (2005).
[7] J. A. Dijksman, E. Wandersman, S. Slotterback, C. R. Berardi, W. D. Updegraff, M. van Hecke, and W. Losert, Phys. Rev. E **82**, 060301 (2010).
[8] P. Coussot and C. Ancey, Phys. Rev. E **59**, 4445 (1999).
[9] P. Coussot and C. Ancey, CR Acad. Sci. II **327**, 515 (1999).
[10] P. Marchal, L. Choplin, and N. Smirani, J. Rheol. **53**, 1 (2009).
[11] J. A. Dijksman, G. H. Wortel, L. T. H. van Dellen, O. Dauchot, and M. van Hecke, Phys. Rev. Lett. **107**, 108303 (2011).
[12] G. D'Anna and G. Gremaud, Phys. Rev. Lett. **87**, 254302 (2001).
[13] P. Mayor, G. D'Anna, A. Barrat, and V. Loreto, New J. Phys. **7**, 28 (2005).
[14] In studies dealing with vibrated dry granular media [12,13], the vibration is often characterized by the so-called acceleration number Γ defined as $A(2\pi f)^2/g$. For comparison purposes, our experiments extend over Γ values ranging between 0.2 and 2.6.
[15] Such a dependence was further verified by using water-potassium iodomercurate dihydrate mixtures as suspending fluids.
[16] I. M. Krieger and T. J. Dougherty, Trans. Soc. Rheol. **3**, 137 (1959).
[17] F. Boyer, E. Guazzelli, and O. Pouliquen, Phys. Rev. Lett. **107**, 188301 (2011).
[18] η_f was adjusted between 1 mPa · s and 500 mPa · s by using various Emkarox-water mixtures.
[19] D. Quemada, Rheol. Acta **16**, 82 (1977).
[20] W. B. Russell, D. A. Saville, and W. R. Schowalter, *Colloidal Dispersions* (Cambridge University Press, Cambridge, 1992).
[21] As recently proposed [17], data could also be fitted using Krieger-Dougherty law [16] $\eta = \eta_f(1 - \frac{\phi}{\phi^*})^{-q}$ with $\phi^* = 0.66$ and $q = 1.65$. However the fit thus obtained is less convincing.

[22] C. Cassar, M. Nicolas, and O. Pouliquen, Phys. Fluids **17**, 103301 (2005).

[23] It must be pointed out that this approach is only valid for Reynolds numbers smaller than 1, i.e., when viscous effects dominate over inertial ones. This local Reynolds number can be expressed as $\frac{A(2\pi f)D\Delta_\rho}{\eta_f}$.

[24] A. K. Doolittle, J. Appl. Phys. **22**, 1031 (1951); **22**, 1471 (1951); **23**, 236 (1952); **23**, 418 (1952); **28**, 901 (1957).

[25] M. C. Jenkins, M. D. Haw, G. C. Barker, W. C. K. Poon, and S. U. Egelhaaf, Phys. Rev. Lett. **107**, 038302 (2011).

Annexe B

Vibration-induced compaction of granular suspension

Sébastien Kiesgen de Richter, Caroline Hanotin, Nicolas Louvet, Sébastien Leclerc, Franck Demeurie & Philippe Marchal

Soumis à *European Physical Journal B* (2014)

EPJ manuscript No.
(will be inserted by the editor)

Vibration-induced compaction of granular suspensions

S. Kiesgen de Richter[1a], C. Hanotin[1], N. Louvet[1], S. Leclerc[1], F. Demeurie[1], and P. Marchal[2]

[1] Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA), Université de Lorraine-CNRS, UMR 7563, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54504, France
[2] Laboratoire Réaction et Génie des procédé (LRGP), Université de Lorraine-CNRS, UMR 7274, Nancy, F-54001, France

Received: date / Revised version: date

Abstract. We study the compaction dynamics of vibrated granular suspensions using a digital imaging technique and MRI measurements. Starting from initialy loose packings and after an initial transient behavior, the dynamics exhibits two regimes: a fast regime at short times where the packing fraction increases linearly and a slow logarithmic regime at larger times. The transition time between these two regimes, τ_c, depends in particular on the fluid viscosity, vibrations intensity and grains diameter. We show that τ_c increases linearly with the lubrication Peclet number, Pe_{Lub} introduced by Hanotin et al.[1] to study the steady-state rheological behavior of both sheared and vibrated granular suspensions. Furthermore, we perform MRI measurements to study the spatial evolution of the compacity in the depth of the vibrated packing during compaction. A rising compaction front whose velocity decreases with Pe_{Lub} propagates in the packing. Dilatancy and memory effects are not observed when the vibration intensity is instantaneously increased. Irreversible behavior is yet evidenced when the vibration intensity is instantaneously reduced. A phenomenological two states model, based on free volume arguments and cooperative rearrangements explains both the existence of the two regimes and the properties of the compaction front velocity.

PACS. PACS-key discribing text of that key – PACS-key discribing text of that key

1 Introduction

Granular dispersions are dense systems made of spherical or arbitrarily shaped particles of size higher than a few hundred micrometers that are completely or partially filled with an interstitial fluid. Contrary to colloids, granular dispersions are non-Brownian. This feature allows peculiar flow properties (jamming, localization, aging) which are not well understood yet. Granular dispersions are widely found in industrial processes as diverse as food manufacturing (cereals), pharmaceutical manufactures (powders, medicines), construction industry (sand, concret), paper industry (fibers, paper pastes) or mining engineering (clay or ores) for example. Some commercially important issues concern the optimization of their transport, storage or mixing properties. The packing fraction of those granular materials controls their rheological behavior and becomes therefore a relevant parameter for a broad range of applications to reduce the costs for their manipulation. The compaction process of dry granular materials has extensively been studied in the litterature [2–10]. Some of these studies [2,3] have experimentally shown that the compaction of dry granular systems presents a slow increase of the packing fraction when series of taps are applied. Among others, two laws are proposed: an inverse logarithmic law with the tapping number[2]

$$\phi(\infty) - \phi(t) \propto \frac{1}{Log(t)} \tag{1}$$

or a stretched exponential law [3]

$$\phi(\infty) - \phi(t) \propto exp(-(\frac{t}{\tau}))^{\beta} \tag{2}$$

with a characteristic compaction time τ which depends on the tap amplitude. Althought compaction dynamics has extensively been studied for dry granular systems, the compaction of fluid saturated granular suspensions is still open. To our knowledge, only one study performed by Lesaffre et al. [11] concerns the compaction of viscous fluid saturated granular suspensions subjected to discrete taps. Authors show that the compaction is slower than in dry packings and follows a logarithmic law (equation 1) but an open question remains as regards how external parameters such as fluid viscosity, grain diameter or tap intensity influences the compaction dynamics. In this work, we focus on the compaction dynamics of viscous fluid saturated granular suspensions not subjected to individual taps but sinusoidal vibrations of given amplitude and frequency. Vibrations are sufficiently low so that grains keep contact with their neighbour. We use digital imaging technique to probe the global compacity of the

packing, $\phi(t)$ and MRI imaging techniques to study local inhomogeneities[12–14] during compaction. We experimentally observe two regimes: a fast linear regime at short times precedes a slow logarithmic regime. The transition between the two regimes is controlled by the lubrication Peclet number, Pe_{lub} previously introduce by Hanotin et al. [15,1] to quantify the rheology of vibrated suspensions. In particular, no stationary state is reached in the accessible experimental time and the compacity at a given delay time increases with the energy injected by vibrations. MRI measurements show that a compaction front propagates from the bottom to the top of the packing with a velocity which decreases with Pe_{lub}. Our results also show that contrary to dry granular systems, no dilatancy effect is observed in fluid saturated granular suspensions subjected to low amplitude sinusoidal vibrations. The absence of observable stationary state and the front propagation velocity is well accounted by a phenomenological two state model related to the inherent bimodal behavior of chain forces in granular packing.

2 Experimental methods

2.1 Materials preparation

We study the compaction dynamics of fluid saturated monodisperse granular suspensions made of spherical glass or zirconium beads[1] ($\rho_{glass} = 2200 Kg.m^{-3}$ and $\rho_{zirco} = 6600\ Kg.m^{-3}$) using digital imaging and MRI measurements. Three bead diameters are used ($100 \pm 5\ \mu m$, $335 \pm 15\ \mu m$, $530 \pm 30\ \mu m$) with different fluid viscosities, η_f ranging from 10^{-3} to 10^{-1} Pa.s. The sample is pourred into a cylindrical plexiglass vessel (20 mm Diameter, 10 cm height) and sinusoidal vertical vibrations are applied via a shaker. The amplitude $[20\ -200\ \mu m]$ and the frequency $[30\ -70\ Hz]$ of vibrations are controlled by a closed loop system (Dactron comet USB) connected to a power amplifier and an accelerometer attached to the vessel (figure 1). Before each experiment starts, the glass tube is filled with the interstitial fluid (Water-Emkarox[2] mixture) of given viscosity. Then, grains are poured little by little in the tube with a funnel. With this method, grains falls slowly forming a loose packing with an initial packing fraction, ϕ_0 of order 0.58 ± 0.01. We verify that all grains have sedimented before each experiment starts. The time one needs to obtain the initial state can be more or less depending on the interstitial fluid viscosity. This procedure gives a reproducible initial state with a flat surface at the top of the packing. In next sections, we present results on the evolution of the packing fraction $\phi(t)$ by applying well controled sinusoidal vibrations of given amplitude, A and frequency, f. Experiments are performed for different values of the Γ number defined as the ratio of the vibrational peak acceleration over the gravitationnal acceleration g, $\Gamma = A\omega^2/g$ where $\omega = 2\pi f$ is the angular frequency. In our experiments, the values of Γ ranges from 1 to 5.

[1] Zirconium beads are used for MRI experiments. Their density being larger than the density of glass beads, the compacity variation is therefore larger and compatible with the MRI resolution.

[2] water soluble polyalkylene glycol

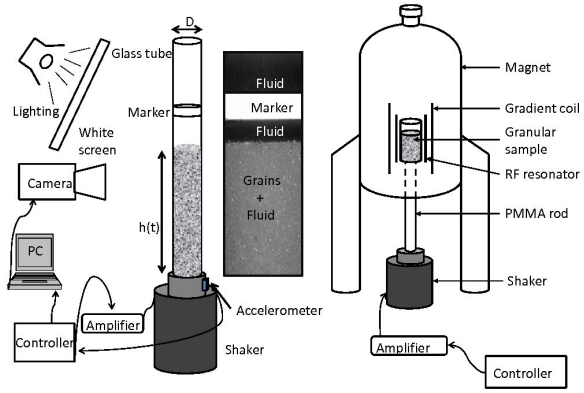


Fig. 1. Sketch of the two exploited experimental set-up.(Left) Digital imaging experimental set-up. The granular suspension is placed in a vertical glass tube subjected to sinusoidal vibrations of given frequency and amplitude. The camera is triggered for strobed image acquisition. An image is taken every five vibration period. (Right) Sketch of the MRI experimental set-up. Vibrations are transmitted from the shaker to the granular sample placed in the spectrometer via a PMMA rod.

2.2 Digital imaging measurements

The compacity is obtained from the height $h(t)$ of the granular column measured with a camera. A ring-shaped white marker, whose height from the bottom of the tube is known, is attached to the tube to calibrate the measurement of $h(t)$. The camera is triggered for strobed image acquisition, such that the camera takes an image every 5 vibration periods. The tube is lighted up from the front with a lamp and a white screen which produce an homogeneous diffuse light. The position of the granular/fluid interface is measured by image analysis via an algorithm especially developed for this task. The variation of pixel values along the vertical is analysed.

An abrupt variation at the interface grains/fluid is detected so that the maximum of the first derivative of the pixel values variations gives the position of the interface. The compacity, $\phi(t)$ is then obtained through the value of $h(t)$, the density of grains, ρ, the diameter of the vessel, D and the weigth of the entire column of grains, m, with $\phi(t) = m/\rho\pi R^2 h(t)$. Our method gives an accurate measure of $\phi(t)$ variations with a high resolution. The accuracy on $h(t)$ is typically limited by the pixel size of the camera ($\approx 10\ \mu m$) which gives an error of about 0.02% in $\phi(t)$. However, this method gives a relatively poor accuracy in the absolute value of $\phi(t)$ due to image calibration, density of the beads and pixel intensity averaging. We estimate that the systematic error on the packing fraction measurement is about 2%.

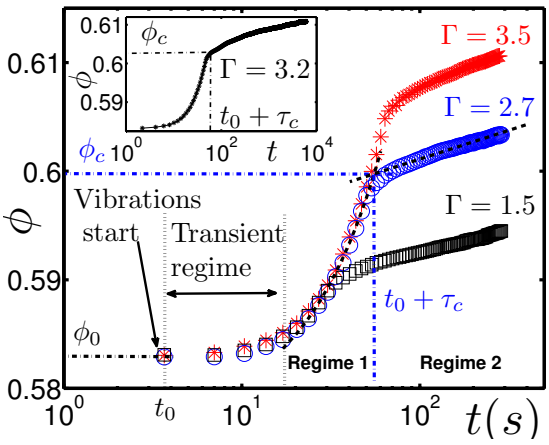


Fig. 2. Packing fraction ϕ(t) as a function of time t for glass beads (335 μm) immersed in a water-emkarox mixture ($\eta_f = 19mPa.s$) obtained by digital imaging measurements. Three different cases are illustrated: $\Gamma = 1.5(squares)$, $2.7(circles)$ *and* $3.5(crosses)$. The dash lines are fitted in the linear ($\Phi \sim t$) and logarithmic ($\Phi \sim log(t)$) regime respectively after a short transient regime. Measurements have been performed at the same vibrations frequency $f = 30$ Hz. Inset: Experimental compaction curve at long time ($\Gamma = 3.2$) showing that no stationary state is reached even after 2 Hours.

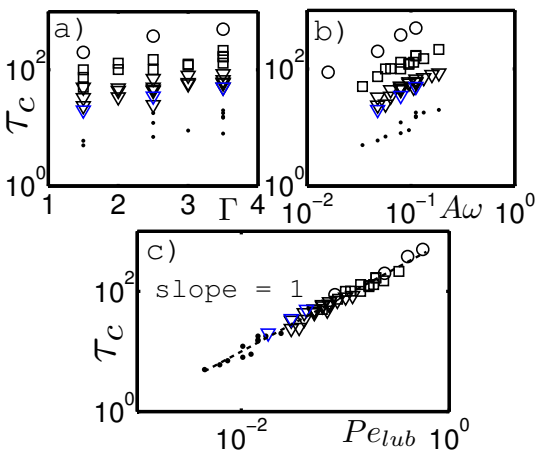


Fig. 3. Critical compaction time τ_c as a function of Γ(a), $A\omega$(b), and the lubrication Peclet number $Pe_{lub} = \eta_f 2\pi Af/PD$ (c). Experiments were carried out for 335 μm and 500μm glass beads immersed in water-emkarox mixtures of different viscosities η_f and vibration intensities (A,f).• $\eta_f = 3.9mPa.s$, $D = 300\mu m$;▽ $\eta_f = 19mPa.s$, $D = 300\mu m$; □ $\eta_f = 53mPa.s$, $D = 300\mu m$;◯ $\eta_f = 150mPa.s$, $D = 300\mu m$; ◇$\eta_f = 19mPa.s$, $D = 500\mu m$

2.3 Magnetic resonance imaging measurements

Magnetic Resonance Imaging measurements give us information on the local packing fraction along the depth of the suspensions during compaction. We acquire 1D profiles along the height of the packing instead of the typical 2D images to reduce data acquisition time. This method allows us to achieve a time resolved monitoring of the compaction dynamics. In this case, the intensity of each pixel is proportional to the proton density in the liquid at a given depth. Another advantage of the 1D experiment is that one avoids vibration artifacts arising from a phase encoding procedure. The experiments were carried on a Bruker Avance III 600MHz spectrometer equipped with a MicWB40 gradient coil and a 2.5 cm diameter quadrature resonator. The granular sample is placed in a special container that was designed to adapt to the specification of this probe, while allowing easy manipulation and a good control of the vibrations. Images were acquired using a classical spin-echo experiment with the following parameters: repetition time (TR) : 5s, echo time (TE) : 6.9 ms, field of view (FOV) : 5cm, matrix : 512 points, spatial resolution 98 μm. The repetition time TR was chosen sufficiently long to avoid longitudinal relaxation contrast. TE was chosen as short as possible, but there is nevertheless a decrease in the signal due to the short transverse relaxation time. In order to take in account this effect in the data processing, $T2$ was measured using a classical Carr Purcell Meiboon Gill method on compacted and non-compacted samples. This relaxation time did not significantly change between the two states. The measured profile was also corrected to take into account the non homogeneous radiofrequency field profile. The packing fraction at each pixel is calculated from the ratio of the corrected intensity of the signal I over the reference intensity I_{ref} measured when the container is only filled with fluid.

3 Evolution of the compacity

3.1 Influence of the vibrations parameters and the interstitial fluid viscosity on the compaction

We analysed the compaction dynamics for different values of Γ and intersitial fluid viscosity η_f. Figure 2 shows the evolution of the compacity obtained by digital imaging measurements as a function of time for 3 different values of Γ (1.5;2.7;3.5) for $\eta_f = 19$mPa.s and $f = 30$Hz.

The compaction dynamics depends on Γ and two regimes are evidenced after a short transient period. The transient regime lasts few seconds and comes from the sarting up of vibrations. Then, a fast dynamics at short time scale (regime 1) is observed and the dynamics slows down after a critial time τ_c corresponding to a compacity Φ_c (regime 2). The existence of two distinct regimes shows that laws 1 and 2 can not describe the entire compaction dynamics of granular suspensions. The evolution of the whole compacity in the first regime does not depend on Γ and is linear ($\Phi(t) \propto t$). We see that all curves collapse on the same master curve in this regime. After a critical time τ_c which increases with Γ and related to a critical compacity Φ_c [3], the system reaches the regime 2. A slowing down of the compaction process is then observed with a logaritmic increase of the compacity with time ($\Phi(t) \propto log(t)$). As shown in the inset of figure 2, the compacity doesn't reach a stationary state in our experimental window of

[3] (Φ_c,τ_c) are experimentaly extracted from the fits as the intersection between the linear and the logarithmic regime

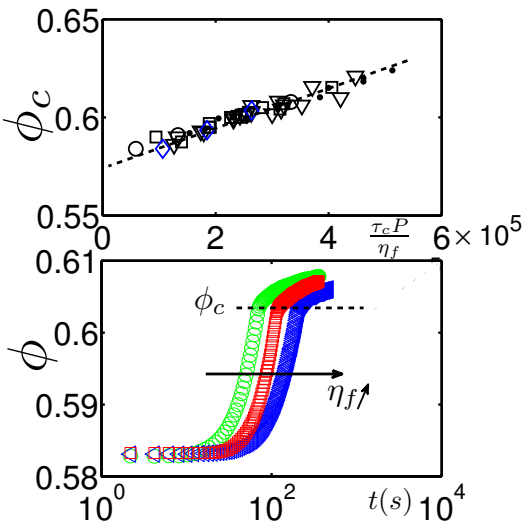


Fig. 4. (top) Critical packing fraction ϕ_c as a function of $\tau_c P/\eta_f$. Experiments were carried out for 335 μm and 500μm glass beads immersed in water-emkarox mixtures of different viscosities η_f and vibration intensities (A,f). • $\eta_f = 3.9mPa.s$, $D = 300\mu m$;▽ $\eta_f = 19mPa.s$, $D = 300\mu m$;□ $\eta_f = 53mPa.s$,$D = 300\mu m$;◯ $\eta_f = 150mPa.s$, $D = 300\mu m$; ◇$\eta_f = 19mPa.s$, $D = 500\mu m$ (bottom) Evolution of the compacity Φ with time for three different viscosities (◯ $\eta_f = 19mPa.s$, □ $\eta_f = 35mPa.s$, ◁ $\eta_f = 60mPa.s$). Experiments were performed for 335μm beads diameter at the same vibrational intensity ($\Gamma = 3.4$, $f = 50Hz$) and show that ϕ_c does not depend on η_f.

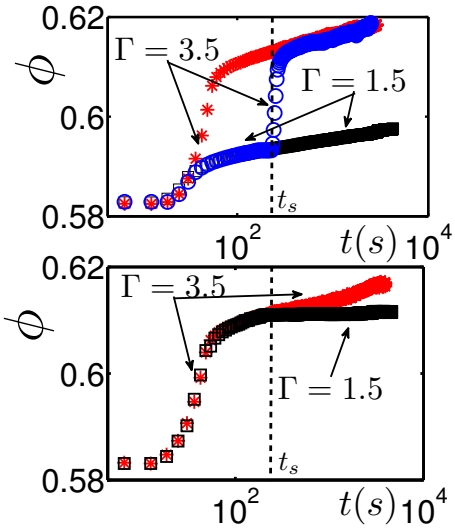


Fig. 5. (top) Evolution of the compacity Φ after the Γ number is switched from 1.5 to 3.5 (blue circle) at $t = t_c$. The reference compaction curves for $\Gamma = 1.5$ (black square) and $\Gamma = 3.5$ (red stars) are plotted. The packing fraction suddently increase when Γ is switched. (bottom) Evolution of the compacity Φ after the Γ number is switched from 3.5 to 1.5 (black square) at $t = t_c$. The reference compaction curve for $\Gamma = 3.5$ is plotted. The packing fraction stops to increase when Γ is switched down and an effective stationary state is reached where Φ is constant.

time. In the last regime, the system shows a "glassy" behavior and ages slowly. This result shows that, starting from a loose packing, no stationary state can be reached in usual rheological experiments where sinusoidale small amplitude vibrations are applied.

In the following, we focus on the transition point (τ_c, ϕ_c) and its dependency with : fluid viscosity, vibration intensity and grain diameters. The figure 3 a) and b) show the critical time τ_c as a function of the Γ parameter and the vibration liftoff velocity $A\omega$ for different fluid viscosities η_f and vibration properties (A, f). From these data, neither Γ nor $A\omega$ are the appropriate parameter that controls τ_c for sinusoidal vibrations as usually assumed in dry granular packings [6]. In particular, τ_c highly depends on η_f as shown in figure 3b). To interprete the results of figure 3, We assume in the following that the compaction mechanism of granular suspensions is governed by the competition between the granular pressure of the packing $P = \Delta\rho g\phi(t)h(t)$, where $\Delta\rho$ is the relative density of beads and fluid, g the gravity and the lubrication stress, $\sigma_{lub} \propto \eta_f A 2\pi f/D$ induced by vibrations which provides more degrees of freedom to the particles to rearrange (see [1]). Figure 3c presents τ_c as a function of the lubrication Peclet number $Pe_{lub} = \sigma_{lub}/P = 2\pi\eta_f Af/PD$. All points fall onto a master curve with a slope +1, extending over two decades in both Pe_{lub} and τ_c , which validates the proposed approach. We conclude that the Pe_{lub} number is the appropriate control parameter to describe the transition between the linear and the logarithmic regime. The transition between the two regimes occurs at a critical compacity ϕ_c related to τ_c and Pe_{lub}.

Figures 4 show that ϕ_c not only depends on τ_c but also on the interstial fluid viscosity η_f as $\phi_c \propto \tau_c P/\eta_f$. For a given Af, we find $\tau_c \propto Pe_{lub} \propto \eta_f$ showing that ϕ_c does not depend on η_f. It comes that $\phi_c \propto Af/D$ and that the critical time τ_c can be interpreted as the typical time a particle takes to move over a distance equals to its diameter in a fluid of effective viscoty $\eta_{eff} = \eta_f\phi_c$ where the critical packing fraction ϕ_c depends on grain diameter and vibrational velocity. ϕ_c is then a critical packing fraction above which cooperative effects appear. As long as the packing is loose, interstitial voids are accesible to individual grains movement, and densification is fast (regime 1). When the packing fraction reaches the critical value ϕ_c the filling of voids requires the cooperation of many grains and becomes slower (regime 2).

3.2 Memory effects and dilatancy

In this section, we investigate the evolution of the compacity when the vibrational intensity is suddently switched. Two cases are considered according to the vibrational energy increases or decreases. Figure 5 (up) shows the behavior of the compacity when the Γ number suddenly increases from 1.5 to 3.5 at $t = t_s$. The compacity increases at t_s and reached the reference curve $\Gamma = 3.5$. This behavior shows that the compacity of the system does not depend on its history when the vibrational intensity increases. No memory effects and dilatancy are observed in

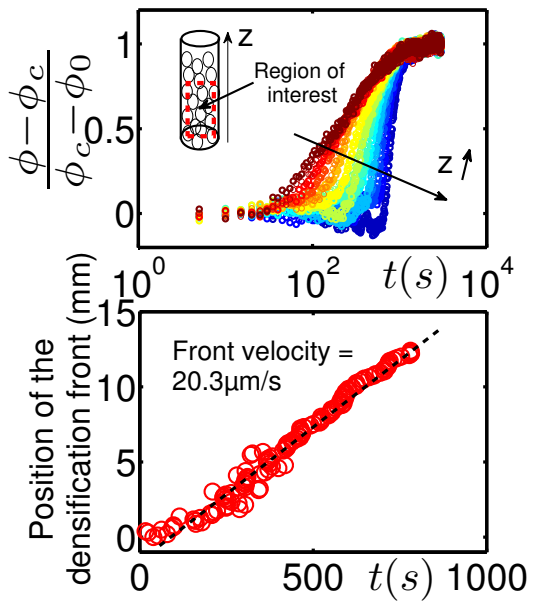


Fig. 6. (top) Evolution of the normalized compacity $(\phi - \phi_c)/(\phi_c - \phi_0)$ as a function of time for different depth, z, in the packing. Data are obtained in the region of interest where MRI measurements are performed for $\eta_f = 560mPa.s$, $D = 100\mu m$, $\Gamma = 2$ and $f = 80Hz$. (bottom) Position of the compaction front as a function of time in the region of interest extracted from the evolution of the scaled compacity. The front is defined as the inflexion point (maximum of the first derivative) of the compaction curve

this case. An increase of the tap amplitude immediately compactes the packing to a new compacity related to the new amplitude. On the contrary, the figure 5 (bottom) shows the inverse case when Γ suddenly decreases from $\Gamma = 3.5$ to $\Gamma = 1.5$ at $t = t_s$. In this case, the compacity suddenly stops to increase and an effective stationary state is reached when the vibrational intensity is reduced. This propertie can be used to prepare a packing with a well controlled compacity at initial time to perform experiments in stationary conditions [1,15]. For that, large amplitude vibrations are applied to the packing during a given time duration and measurements are performed at lower amplitudes. With that experimental protocol, experiments can be conducted at imposed packing fraction under vibrations. In addition, when large intensity vibrations are applied, the system reaches a dense state rapidly whith large local cohesion stresses and then when vibrations are reduced, the injected energy by vibrations is not sufficient to cause large rearrangements and the compaction dynamics stops.

4 Inhomogeneities in the depth of the packing during granular compaction

We describe below experimental results concerning MRI measurements used to study the inhomogeneity of ϕ in the depth of the packing during compaction. The experimental protocol and methods are described in part 2. MRI

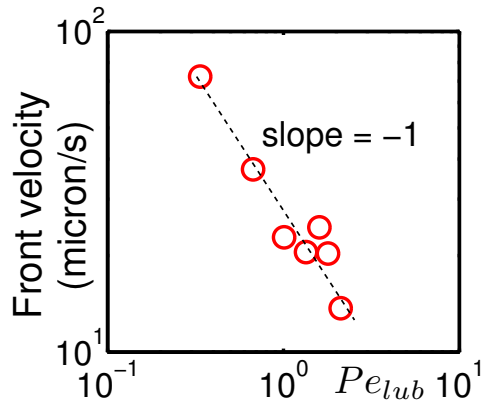


Fig. 7. Evolution of the front velocity extracted from the position of the densification front as a function of the lubrication peclet number, Pe_{lub}. The slope -1 is a guide for eyes.

technique allows us to monitore the evolution of the local compacity as a function of time in a region of interest close to the bottom of the packing. Even though the precision on the absolute value of the compacity is poor, the technique gives us an accurate method to monitore the variations of the compacity as a function of time at a given depth.

Figure 6 top shows the evolution of the normalized packing fraction $(\phi - \phi_c)/(\phi_c - \phi_0)$ with time for different values of the depth, z along the height of the packing. At a given depth, the evolution is similar to the one obtained by macroscopical measurements (see figure 2). A fast linear regime appears at short times and is followed by a slow log regime. Compaction curves shows that the compacity highly depends on the depth, z. The compaction process begins at the bottom of the vessel and a compaction front propagates slowly toward the top of the packing . It propagates linearly with time with a typical constant velocity of the order of tens micrometers per seconds (fig 6 bottom). This result suggests that the system compacts by succesive layers. The velocity of the front depends on the experimental parameters previously introduced. This dependency is not trivial since the propagation velocity depends on the critical packing fraction ϕ_c. For larger ϕ_c, a given layer would take more time to compact and the front velocity would decrease. Figure 7 shows the evolution of the front velocity as a function of the previously introduced Pe_{lub} number. The velocity decreases in log-log with Pe_{lub} with a slope closed to -1[4]. It decreases with the interstitial fluid viscosity η_f and with the energy injected by vibrations as the typical compaction time τ_c previously introduced. When Pe_{lub} increases, τ_c increases and a given layer takes more time to compact. The front velocity thus decreases.

[4] The low precision on the value of the front velocity which depends on the heterogeneities in the packing could explain the discrepancy.

5 Interpretation: a phenomenological two state model

5.1 Free volume arguments

In this section, we propose a simple phenomenological model based on free volume arguments to describe the compaction dynamics of vibrated granular suspensions. The model describes the compaction dynamics as a transition between two states: a "mobile state" (M) where particles are free to rearrange (largest free volumes per particles) and a "consolidated state" (C) where particles are jammed (critical free volume per particle (see figure 8 left and [16]). The variable of state used is the fraction of grains in the state (C), P_c, defined as $P_C = N_C/N_P$ with N_C the number of grains in the state C, N_P the total number of grains and P_M the occupation probability of state (M) such as $P_M + P_C = 1$. The temporal evolution $\dot{P}_C$ is given by:

$$\begin{aligned}\dot{P}_C(t) &= \omega_{CM}(t)P_M(t) - \omega_{MC}(t)P_C(t) \\ &= (1 - P_C(t))\omega_{CM}(t) - \omega_{MC}(t)P_C(t) \qquad (3)\end{aligned}$$

where ω_{CM} and ω_{MC} are probabilities of transition per unit time between states (M) and (C). To model compaction, we suppose that particles can not escape from the state (C) ($\omega_{MC} = 0$) but can escape from the state (M) depending on the free volume and the energy injected by vibrations. Assuming a Maxwell-Boltzmann distribution of free volumes in vibrated granular matter[15,20–22], we suggest that transitions are activated by vibrations and occur at a rate $\omega_{CM}(t) \propto f_0 exp(-\frac{\xi v_f^*}{\bar{v_f}})$ [15,17–19] where $\bar{v_f}$ is the mean free volume per particles, v_f^* a characteristic free volume beyond which spatial rearrangements of neighbouring contacts become possible, ξ is an overlap factor of the grains free volumes and f_0 a typical grains reorganization frequency. $\bar{v_f}$ is related to the compacity, $\bar{v_f} = v_g(1/\phi(t) - 1/\phi_{RCP})$ where $v_g$is the volume of a single particle and ϕ_{RCP} is the random close-packing limit (≈ 0.64). Assuming that [5] $v_f^* = Kv_g$ where K is a constant,

$$\omega_{CM}(t) \propto f_0 exp(-\frac{K_1}{\frac{1}{\phi(t)} - \frac{1}{\phi_{RCP}}}) \qquad (4)$$

with $K_1 = K\xi$.

To allow experimental assessment, we can reasonably assume that[6] $\phi(t) \sim P_C(t)$. The kinetic equation 3 is transformed into a differential constitutive equation on $\phi(t)$.

$$\dot{\phi}(t) = (1 - \phi(t))f_0 exp(-\frac{K_1}{\frac{1}{\phi(t)} - \frac{1}{\phi_{RCP}}}) \qquad (5)$$

[5] v_f^* scales with grain diameter and is purely geometric as K. It should not depend on vibrations properties contrary to ξ

[6] Starting from loose packings, the packing fraction increases with $P_c(t)$

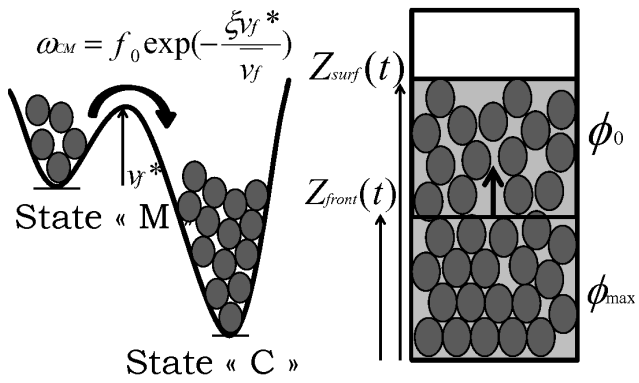


Fig. 8. (Left) Sketch of the phenomenological 2 state model. Grains can move from a loose state M to a consolidated state C depending on the transition rates ω_{CM} and ω_{MC}. (Right) Sketch of the compaction front propagation. $Z_{front}(t)$ is the position of the interface which separates the packing in two states: a consolidated state at ϕ_{max} and a loose state at ϕ_0.

We plot in figure 9, the evolution of $\phi(t)$ as a function of t for different values of the K_1 parameter. As observed experimentally, a slow regime appears when the compacity gets close to the critical packing fraction ϕ_{RCP}. At the opposite, for $\phi << \phi_{RCP}$ (short times)there is a fast variation of the compacity. The transition time between the two regimes increases with the K_1 parameters and the typical reorganisation frequency f_0. The slow regime observed at large times comes from the existence of the critical free volume v_f^*. When the mean free volume per particles becomes of the order of v_f^*, the probability for a grain to fall in a hole formed by its neighbour decreases and the compaction dynamics slow down. The compacity evolves slowly and evidences an "ageing" phase. Compacity curves are shifted when f_0 decreases as observed experimentally when the interstitial fluid viscosity increases (see figure 4) This suggest that f_0 is proportional to the inverse of the time a particle needs to move through the fluid of viscosity η_f to enter into direct contact with another particle under the granular pressure P, $f_0 \propto P/\eta_f$. This predicts that the typical compaction time should increase linearly with η_f as observed experimentally. The evolution of the compaction curves whith K_1 also suggests that $K1$ decreases when the vibration energy increases as f_0. Despite the fact that our approach remains at a mean-field level, it is able to explain the existence of a fast regime at short times where grains rearrange easily and a slow regime at larger times where a gradual ageing of the packing is observed as a result of the existence of a critical free volume beyond which spatial rearrangements of neighbouring contacts become possible.

5.2 Compaction front propagation

MRI measurements highlights the existence of a compacity front in the depth of the packing whose velocity de-

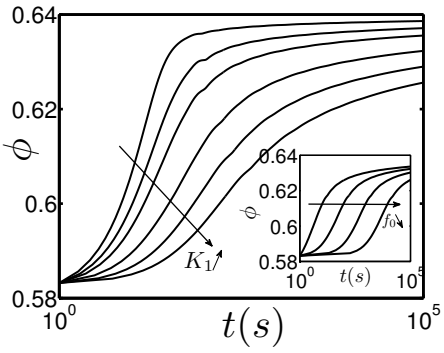


Fig. 9. Compacity as a function of time given by equation 5 for different values of K_1 parameter with $f_0 = 10^{-2}$, $\phi_{RCP} = 0.64$. From top to bottom, le lines corresponds to $K_1 = 0.05$, 0.1, 0.15, 0.25,0.35 and 0.5 respectively. Inset: The corresponding results for $K_1 = 0.25$ and $\Phi_{RCP} = 0.64$ with $f_0 = 10^{-1}$, 10^{-2}, 10^{-3} and 10^{-4}.

creases with Pe_{lub} in the linear regime. To interprete this result, we suppose that the transition from the state M to the state C is inhomogeneous in the depth of the packing and begins at the bottom of the vessel. The packing can then be separated in two parts: a bottom part where the compacity, $\phi(t)$ equals the final compacity ϕ_{max}[7] and an upper part where the packing fraction keeps equal to the initial packing fraction ϕ_0 (see figure 8 right). The bottom part has a height $Z_{front}(t)$ and the the position of the free surface of the packing is $Z_{surf}(t)$. Mass conservation during the compaction process gives:

$$Z_{surf}(0)\phi_0 = Z_{front}(t)\phi_{max} + \phi_0(Z_{surf}(t) - Z_{front}(t)) \quad (6)$$

Assuming a linear evolution of the height of the free surface at short times (linear regime, see section 3), $Z_{surf}(t) = Z_{surf}(0) - \alpha t$ where α is constant during the compaction process. The velocity of the front $\dot{Z}_{front}(t)$ writes:

$$\dot{Z}_{front}(t) = \frac{\phi_0 \alpha}{\phi_{max} - \phi_0} \quad (7)$$

According to section 3, α depends on the slope of the compacity in the linear regime and is proportional to P/η_f. In the same way, ϕ_{max} is proportional to the critical compacity ϕ_c and scales with Af/D. At low packing fractions, Equation 7 predicts then a constant $\dot{Z}_{front}$ proportional to $\phi_0\alpha/\phi_{max} \propto \eta_f Af/PD = Pe_{lub}^{-1}$ as observed experimentally (see figure 7).

6 Conclusion

In this article, we evidence the existence of two regimes during compaction of gravitational suspensions. A linear regime appears at short times whose slope increases with the insterstitial fluid viscosity. We do not observe a stationary state in the experimental window time. The linear regime comes before a second regime whose compacity evolves slowly (log regime). The second regime can last many hours. The transition between these two regimes occurs at a critical packing fraction, ϕ_c which increases with $\frac{Af}{D}$ related to a critical time τ_c which scales with the lubrication Peclet number Pe_{lub}^{-1}. Experiments where vibration intensity is suddenly changed show that no dilatancy is observed when the vibration increase but compaction dynamics speed up. MRI measurements highlight the existence of a compaction front that propagates in the height of the packing during compaction. Its velocity is constant and scales with Pe_{lub}^{-1}. A phenomenological two state model which takes into account the inhomogeneity in the depth of the packing predicts the scalings observed experimentally. Free volume arguments explain the slowing down of the dynamics in the second regime when the mean free volume per particles approaches the criticical free volume beyond which spatial rearrangements are possible.

[7] ϕ_{max} is the final packing fraction reached for a given fluid viscosity, grain diameter and vibration intensity.

References

1. C. Hanotin, S. K. de Richter, P. Marchal, L. J. Michot, and C. Baravian, Phys. Rev. Lett, **108**, (2012) 198301.
2. J. Knight, C. Fandrich, C. N. Lau, H. Jaeger and S. Nagel, Phys. Rev. E **51**,(1995) 3957-3963
3. P. Richard, M. Nicodemi, R. Delannay, P. Ribire and D. Bideau, Nature Materials **4** (2005) 121-128
4. G.Lumay and N.Vandewalle, PRL, **95** (2005) 028002
5. G.Lumay and N. Vandewalle, Phys.Rev.E, **74** (2006) 021301
6. J. A. Dijksman and M. van Hecke, EPL, **88** (2009)44001
7. N. Mueggenburg, Phys.Rev.E, **85** (2012) 041305
8. S.Zivkovic et al., Eur. Phys. J. B, **86** (2013) 461
9. M.Nicolas, P.Duru, O.Pouliquen, Eur.Phys.J.E, **3** (2000) 309
10. O.Pouliquen, M. Belzons, M. Nicolas, Phys. Rev. Lett. **91** (2001) 014301
11. C. Lesaffre, V. Mineau,D. Picart and H.Van damme, C. R. Acad. Sci. Paris **1**,(2000) 647-653
12. E. Fukushima, A.D. Rosato, M. Kos, Rev.Sci.Instrum., **68** (1997) 4217-4220
13. M.D. Mantle, A. Sederman, L.F. Gladden, J.M. Huntley, T.W. Martin, R.D. Wildman, M. D. Shattuckc , Powder Technology, **179** (2008) 164-169
14. K.SAKAIE et al, EPL, **84** (2008) 38001
15. P. Marchal, L. Choplin and N. Sminari, Journal of rheology,**1** (2009) 1
16. P. Marchal, C. Hanotin, L.J Michot and S. Kiesgen de Richter, Phys. Rev. E **88.1**, (2013) 012207.
17. S. F. Edwards and R. B. S. Oakeshott, Physica A **157**, (1989) 1080.
18. T. Aste and T. D. Matteo, Phys. Rev. E **77**, (2008) 021309.
19. P.G de Gennes, Journal of colloid and interface science **226.1**, (2000) 1-4
20. E. Caglioti, A. Coniglio, H.J. Herrmann, V. Loreto and M. Nicodemia, Physica A **265**, (1999) 311
21. T. Boutreux and P.G. de Gennes, Physica A **244**, (1997) 59
22. P.Richard et al., Phys.Rev.E **68**, (2003) 020301

Annexe C

Two-state model to describe the rheological behavior of vibrated granular matter

Philippe Marchal, Caroline Hanotin, Laurent J. Michot & Sébastien Kiesgen de Richter

Physical Review E, **88**, 012207 (2013)

Two-state model to describe the rheological behavior of vibrated granular matter

Ph. Marchal,[1,*] C. Hanotin,[2] L. J. Michot,[3,†] and S. Kiesgen de Richter[2]

[1]*CNRS, Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP-GEMICO), UMR 7274, Université de Lorraine, Nancy, F-54001, France*

[2]*CNRS, Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA), UMR 7563, Université de Lorraine, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54504, France*

[3]*CNRS, Laboratoire Interdisciplinaire des Environnements Continentaux (LIEC), UMR 7360, Université de Lorraine, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54501, France*

(Received 27 February 2013; revised manuscript received 21 June 2013; published 25 July 2013)

In this paper, we present a model aimed at predicting the rheological response of a 3D dry granular system to nonstationary mechanical solicitations, subjected or not to vibrations. This model is based on a phenomenological two-state approach related to the inherent bimodal behavior of chain forces in granular packing. It is set up from a kinetic equation describing the dynamics of the contact network. To allow experimental assessment, the kinetic equation is transformed into a differential constitutive equation, relating stress to strain, from which rheological properties can be derived. Its integration allows predicting and describing several rheological behaviors, in stationary and nonstationary conditions, including viscous (Newtonian) and frictional (Coulombian) regimes, as well as elastic linear (Hookean and Maxwellian) and nonlinear behaviors. Despite its simplicity, since it involves only three independent parameters, the model is in very close agreement with experiments. Moreover, within experimental errors, the values of these parameters are independent of the type of test used to determine them, evidence of the self-consistency of the model.

DOI: 10.1103/PhysRevE.88.012207 PACS number(s): 83.80.Fg, 47.57.Gc, 47.57.Qk

I. INTRODUCTION

Understanding granular packing stability is of major importance in numerous natural and industrial situations. For instance, packing stability plays a crucial role in the triggering of avalanches or landslides or in the blocking of industrial silos. Despite intrinsic differences linked to the non-Brownian nature of granular materials, their rheological behavior is by many aspects rather similar to that of complex colloidal media (polymers, surfactants, dispersions...). In particular, granular media behave either as solids or liquids, depending on the mechanical solicitations to which they are subjected. Still, recently developed mesoscopic models, such as SGR, STZ, or MCT [1–4], that capture some of the flow and deformation features of amorphous materials are not able to account for all experimentally observed rheological behaviors of flowing granular matter [5–8]. This is certainly linked to the discrete, macroscopic nature of granular materials. Indeed, in response to some change in external forces, the macroscopic behavior of a granular system is related to the evolving structure of its contact network [9–11] and to the nature of the contacts themselves (frictional interactions, sliding or not) [12,13].

Recent experimental [14,15] and simulation [13,16] works have shown that it was relevant to describe 3D granular packings as the combination of two contact networks, a weak one and a strong one, that evolve independently from each other in response to external solicitations. Strong contacts ensure cohesion, momentum transport, and linear elastic properties, whereas weak contacts dominate nonlinear effects. Therefore, the way stress propagates through the network of intergranular contacts strongly depends on sample density and on the spatial configuration adopted by the grains, after sample conditioning inside characterization devices [17–19]. As a consequence, to perform representative measurements that are not sensitive to the particular topology of a stack, it is crucial to obtain information that is averaged over all the accessible configurations. Unfortunately, granular media being macroscopic athermal systems, their initial configurations do not evolve spontaneously. A way to overcome this problem could be to use vibrations. Indeed, it has recently been shown that vibrations (even of small amplitude) influence the rheology and the dynamics of grains in granular packings [20–32]. Furthermore, D'Anna *et al.* [26,27,33–35] have discovered that the motion of a torsion oscillator immersed in an externally vibrated granular medium of glass spheres is Brownian-like. In the case of granular materials, using mechanical energy is analogous to the use of thermal energy for Brownian systems.

In that context, we have developed a powder rheometer prototype equipped with a vibrating cell [23,24,36]. Using such a setup, we have been able to carry out detailed studies of the rheological features of vibrated powders under stationary solicitations [20–24]. At low stationary stress, the viscosity exhibits a Newtonian behavior controlled by the energy injected by vibrations, whereas the behavior remains frictional and independent of vibrations at higher stress. It has further been shown in Marchal *et al.* [23,24] that the Newtonian behavior could be predicted on the basis of a rheological model assuming a Maxwell-Boltzmann distribution of free volumes in vibrated granular matter [37–40]. In the present paper, we develop a simple phenomenological model, based on the dynamics of the contact network, to predict the rheological response of a 3D vibrated dry granular packing subjected to nonstationary solicitations, thus extending our previous analyses. We show that a simple two-state model related to the inherent bimodal behavior of chain forces in

*philippe.marchal@univ-lorraine.fr

†Present address: CNRS, Physicochimie des Electrolytes, Colloïdes et Sciences Analytiques (PECSA), UMR 7195, Université Pierre et Marie Curie, Paris Cedex 5, F-72522, France.

 ©2013 American Physical Society

granular packing associated with a detailed balanced equation describing transition rules between these two states can predict, in part, the rheological behavior of vibrated and sheared granular matter in both stationary and nonstationary conditions.

II. MODEL

A. A toy experiment: the "stick stuck" effect

A well-known simple experiment, the "stick stuck" experiment [41], will serve as a starting point for modeling (Fig. 1).

In this experiment, a wooden stick is introduced [Fig. 1(a)] in a container filled with compacted granular medium (such as sand or powdered sugar). After a slight compaction of the sample, the stick is pulled vertically so that the grains tend to move slightly with respect to each other. Under the principle of Reynolds dilatancy [42,43], a compacted granular medium can only be deformed by increasing its volume: grains must move away from each other to exit from the interstices formed by their nearest neighbors. In a medium confined by rigid walls, dilatancy results in a compression of the grains against each other, leading to the formation of arches between the stick and the container [Fig. 1(b)]. Therefore, a consolidation stress is induced between the grains up to a value related to the weight of the sample. If the stress exerted via the stick is higher than the consolidation stress, a critical deformation γ_c is exceeded, resulting in a rupture of the arches and the drop of the container [Figs. 1(c) and 1(d)]. Conversely, as long as this stress does not exceed the consolidation stress, the arches are strong enough to allow the rising of the container and its contents upon the rise of the stick [Fig. 1(e)]. However, when the system is subjected to slight vibrations, a liquefaction phenomenon occurs, arches are destabilized, and the container falls [Figs. 1(f) and 1(g)]. This experiment shows that the grains form a contact network consolidated by shear in the limit of small deformations ($\gamma < \gamma_c$) but destabilized by the same shear at large strains ($\gamma > \gamma_c$). Vibrations clearly destabilize the network through a liquefaction process, since it is impossible to lift the container with the stick when the sample is subjected to vibrations. This experiment shows that in a vibrated granular medium under shear, at a given time t, some grains are in contact and are able to ensure stress transmission while others are disconnected and unable to provide such a transmission. It then appears that a given grain can only be in two distinct states: a consolidated state (C) that ensures momentum transport and a mobile state (M) disconnected. The granular medium, thus, reduces to a two-level system [44], the transition between these states being ensured by vibrations and shear.

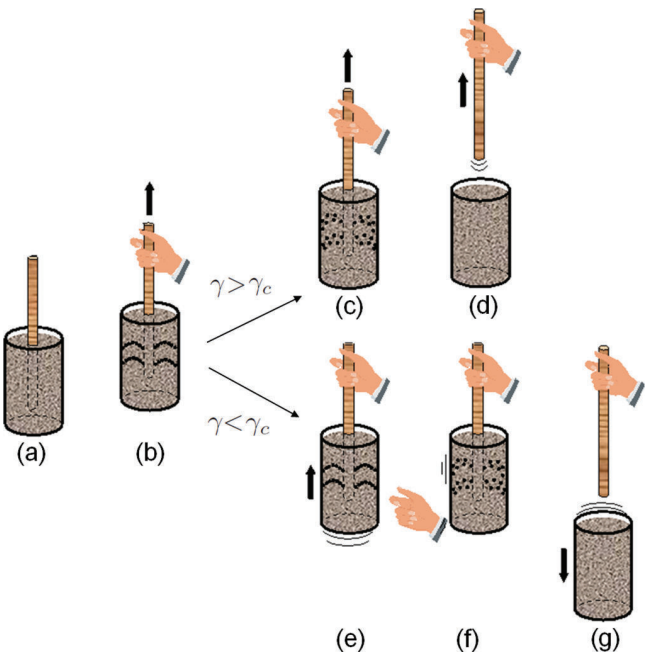


FIG. 1. (Color online) The "stick stuck" experiment.

B. A two-state model for vibrated granular matter

Since only the grains in the state (C) ensure momentum transport, we use as a variable of state the fraction of grains $P_C = N_C/N_p$, where N_C is the number of grains in the state (C) and N_p the total number of grains. In other words, P_C is the occupation probability of state (C) as $P_M + P_C = 1$, where P_M is the occupation probability of state (M) (Fig. 2).

The temporal evolution $\dot{P}_C(t) = \frac{dP_C(t)}{dt}$ of the fraction of grains in the state (C) is equal to the fraction of grains evolving from (M) to (C) minus the fraction of grains making the reverse transition per unit of time:

$$\begin{aligned}\dot{P}_C(t) &= \omega_{CM}(t)P_M(t) - \omega_{MC}(t)P_C(t)\\ &= \omega_{CM}(t)[1 - P_C(t)] - \omega_{MC}(t)P_C(t). \qquad (1)\end{aligned}$$

Equation (1) is a balance equation related to the average probability P_M and P_C of occupation of states (M) and (C). Consequently, the kinetic constants ω_{CM} and ω_{MC} are the frequencies or probabilities of transition per unit time between states (M) and (C).

The "stick stuck" experiment shows that on average $C \to M$ transitions, which correspond to the rupture of the contacts network, are induced by both shear and vibrations. On the one hand, the probability of transition induced by vibrations is, by definition, equal to the Brownian reorganization frequency f_b of the grains [23,24]. On the other hand, the probability of reorganization induced by shear is equal to the frequency at which the grains are disconnected when the critical strain γ_c is exceeded. It is then proportional to shear rate $\dot{\gamma}$. As these two processes are uncorrelated, the total transition frequency ω_{MC}

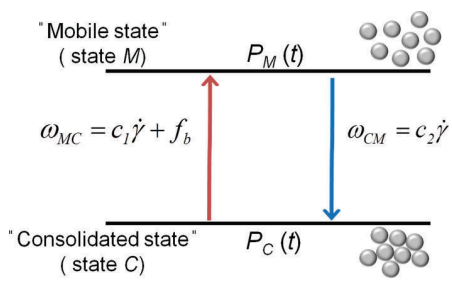


FIG. 2. (Color online) The two-state model used to describe the rheological behavior of granular matter subjected to vibrations and shear. $P_C(t)$ and $P_M(t)$ are, respectively, the probability of occupation of state (C) and (M) at time t.

is simply equal to the sum of the frequencies of reorganization corresponding to each process (*addition law*). In contrast, $M \rightarrow C$ transitions are only due to shear. Therefore, the frequency ω_{CM} at which the grains are put in contact with each other is also proportional to $\dot{\gamma}$. It follows that

$$\omega_{MC} = c_1\dot{\gamma} + f_b \text{ and } \omega_{CM} = c_2\dot{\gamma}. \tag{2}$$

With $\gamma_c = 1/(c_1 + c_2)$, Eq. (1) can be written

$$\begin{aligned} \dot{P}_C(t) &= c_2\dot{\gamma}(t)[1 - P_C(t)] - [c_1\dot{\gamma}(t) + f_b]P_C(t) \\ &\Longleftrightarrow \dot{P}_C(t) + \left[\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right]P_C(t) = c_2\dot{\gamma}(t). \end{aligned} \tag{3}$$

In practice, the structural variable P_C is not experimentally measurable. It is then necessary to relate it to an observable rheological variable for transforming kinetic Eq. (3) into a rheological equation accessible to experiment. If one considers the stress as a diffusive flux of momentum and by assuming that it is transported by channels constituted by the "strong contacts network," it appears that the number of channels increases with the number of consolidated grains. According to such a hypothesis, a heuristic way to turn Eq. (3) into a constitutive rheological equation is to assume that the stress is proportional to the fraction of grains in state (C). The consequence of such a choice will be tested, *a posteriori*, against experiments in the following. Indeed, writing $\sigma(t) = aP_C(t)$ in Eq. (3) leads to

$$\begin{aligned} &\dot{\sigma}(t) + \left[\frac{\dot{\gamma}(t)}{\gamma_c} + f_b\right]\sigma(t) \\ &\quad = G\dot{\gamma}(t) \Longleftrightarrow \dot{\gamma}(t) = \gamma_c\frac{\dot{\sigma}(t) + f_b\sigma(t)}{G\gamma_c - \sigma(t)}. \end{aligned} \tag{4}$$

Where $G = ac_2 = \text{cte}\ (\forall\dot{\gamma})$.

The evolution of a macroscopic system, induced by a random process [45], can be modeled by a kinetic equation like Eq. (3) if the system loses the memory of its previous microscopic states. Such memory loss must occur over a period much shorter than the macroscopic characteristic time of its macroscopic evolution [46]. At the microscopic scale, the transitions between different states of the system are due to the formation and breaking of intergranular contacts. The characteristic time corresponding to such a phenomenon refers to the duration of rearrangements between grains. The dimensional analysis of dense granular flows has revealed that, at the microscopic scale, the only relevant microscopic time for rigid grains of diameter d_p and density ρ_p is the confinement time $t_{\text{cf}} = d_p\sqrt{\rho_p/P}$ [6,7]. It corresponds to the time a destabilized particle takes to fall into a neighboring gap of size d_p under the confining pressure $P = \phi\rho_p gz$, corresponding to the normal stress exerted on the grains, $\rho = \phi\rho_p$ being the mass density of a sample of volume fraction ϕ and z the depth at which the grain is located within the sample. For glass beads of diameter 500 μm at a volume fraction ϕ of 0.6, considering $\rho_p \approx 2500$ kg m^{-3}, $z \approx 10^{-2}$ m, and $P \approx 150$ Pa, one obtains $t_{\text{cf}} \approx 2\times10^{-3}$ s. It must be pointed out that, at the microscopic scale, the Hertzian contact time t_{hz} should also be considered. This time is related to the time t_{el} corresponding to the dissipation of the mechanical energy via elastic waves propagation through the material. For instance, for glass beads such as $G \approx 7\times10^{10}$ Pa, one obtains [47]: $t_{\text{hz}} = (\frac{d_p^2\rho_p}{G\dot{\gamma}^{1/2}})^{2/5} \approx 2\times10^{-6}$ s for $\dot{\gamma} = 1$ s^{-1}. t_{hz} being approximately three orders of magnitude lower than t_{cf}, analyzing the systems over time periods that are large with regard to t_{cf}, ensures a proper separation of time scales. In such conditions, granular reorganization can likely be described using a Markovian approach and should, therefore, be reasonably described using a kinetic equation such as Eq. (3). We will in the following test such an assumption by comparing experimental rheological measurements with predictions derived from Eq. (4). We focus in the present case on the response of the vibrated samples to *nonstationary solicitations*, i.e., stress steps or sinusoidal stresses. This significantly extends the analysis carried out in Ref. [24] that was restricted to stationary situations only.

III. EXPERIMENTAL RESULTS

A. Material and methods

Glass beads samples (Total mass $m = 130$ g, mean diameter 530 μm with a standard deviation of 90 μm) were analyzed by both creep tests (steps of stresses) and mechanical spectroscopy (sinusoidal stresses). All experiments were carried out using a stress-imposed rheometer (AR2000, TA Instruments) equipped with a "powder cell," able to generate granular reorganizations into the powder. This cell includes a four blades vane device plunging into a baffled cylindrical cup, which prevents sample slipping. The device is connected to a vibration exciter (Mini-shaker, Bruel and Kjær) controlled by a function generator and an accelerometer (Fig. 3). Vibrations are sinusoidal and the energy E_v supplied to the granular medium is $E_v = m(2\pi f)^2A^2/2$, where m is the sample mass and f and A, the frequency and amplitude of the vibrations. E_v/m is a key factor that has been shown to control the dynamics of the intergranular contact network [24]. It is proportional to the energy injected among the grains and it can be assimilated to a granular temperature since it follows similar laws as true temperature associated with Boltzmann's statistics. Accordingly, f_b is an increasing function of E_v as shown in Ref. [24] and in Appendix A, in the same way as Brownian collision frequency between microscopic particles is an increasing function of kT in molecular or colloidal systems.

Creep tests were carried out for various stresses and for different values of the vibration energy E_v. Mechanical spectroscopy experiments were also carried out for different vibration energies, but in the following, for concision reasons, we will only show results obtained for a given frequency and energy ($f = 50$ Hz, $A = 0.16$ mm, $E_v = 164$ μJ). So, we focus here on the transient regime via creep tests and mechanical spectroscopy at a given frequency ($f = 50$ Hz, $A = 0.16$ mm, $E_v = 164$ μJ). The experimental results obtained for different values of the vibration energy are summarized in Appendix A.

Prior to each rheological test, the samples were submitted to vibrations over periods long enough to ensure stationary states of compaction. Rheological parameters ($\sigma, \gamma, \dot{\gamma}$) are obtained from the evolution of torque (C) versus angular rate ($\dot{\theta}$) data via a calibration procedure leading to the determination of two

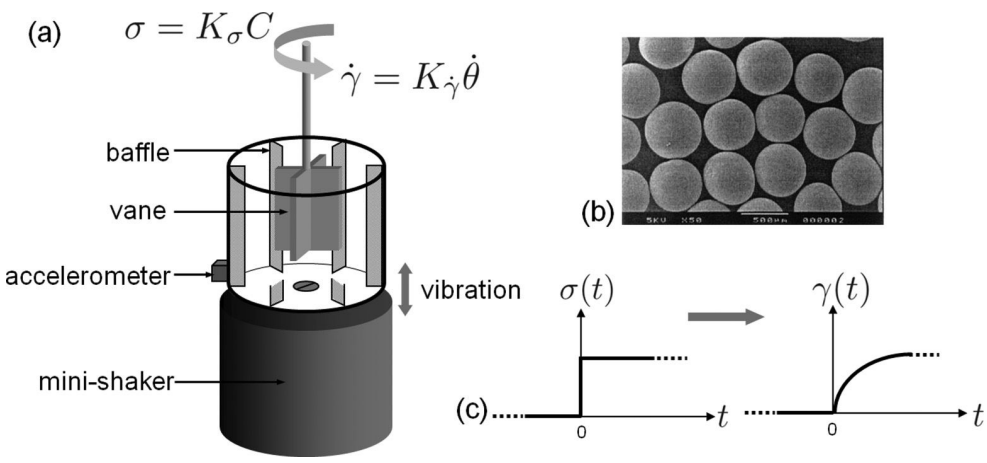


FIG. 3. (a) Experimental setup. (b) Microscopic snapshot of glass beads of the sample. (c) Measurements principle.

geometrical factors K_σ and $K_{\dot{\gamma}}$, such as $\sigma = K_\sigma C$ and $\dot{\gamma} = K_{\dot{\gamma}}\dot{\theta}$. Considering the measuring cell as a Couette device, K_σ and $K_{\dot{\gamma}}$ are determined by solving the equation of motion with boundary conditions imposed by the geometrical dimensions of the inner and outer cylinders, in the case of a generalized Newtonian fluid obeying a power law model. Such a choice is not restrictive since any generalized Newtonian fluid can be asymptotically assimilated to a power law fluid. A more detailed description of the equipment and of the calibration procedure can be found in Ref. [24].

B. Rheological behavior of the samples

1. Response to a stress step

In the case of a stress step defined as $\sigma(t) = 0$ for $t < 0$ and $\sigma(t) = \sigma$ for $t > 0$ [Fig. 3(c)], the integration of Eq. (4) yields (Appendix B)

$$\gamma(t) = \gamma_c \frac{f_b t}{\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1} - \gamma_c \ln\frac{1}{\gamma_c}\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right) + \gamma_c \ln\left(\frac{G}{\sigma}\right)$$
$$= \gamma_c \left[\frac{f_b t}{\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1} - \ln\left(1 - \frac{\sigma}{G\gamma_c}\right)\right]. \quad (5)$$

Differentiating Eq. (5), one obtains the expression of the shear rate $\dot{\gamma}(t)$ as a function of the amplitude of the shear stress σ:

$$\dot{\gamma}(t) = \frac{\gamma_c f_b}{\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1} = \dot{\gamma}$$
$$\Longleftrightarrow \eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} = \frac{\eta_0}{1 + \frac{\dot{\gamma}}{\gamma_c f_b}} = \frac{\sigma_f}{\gamma_c f_b + \dot{\gamma}}, \quad (6)$$

with $\eta_0 = G/f_b$ and $\sigma_f = \eta_0 \gamma_c f_b = G\gamma_c$.

As f_b is an increasing function of E_v, Eq. (6) shows that viscosity decreases when vibration energy increases (via the frequency f and/or the amplitude A) or equivalently when granular temperature increases. This suggests that the sample should behave as a molecular condensed fluid [24]. In addition, Eq. (6) shows that the rheological behavior expected is viscous non-Newtonian, shear thinning. Furthermore, it reveals the existence of a Newtonian viscous regime at low shear rate ($\eta \to \eta_0$ when $\dot{\gamma} \to 0$) followed by a Coulombian frictional regime at high shear rate ($\sigma \to \sigma_f$ when $\dot{\gamma} \to +\infty$). See Ref. [24] for a more extensive analysis. Before any experimental confrontation, the consistency of Eqs. (5) and (6) can be evaluated by examining extreme situations corresponding to two limiting cases:

(i) In the limit of small stresses, for $\sigma(t) \ll G\gamma_c$ or equivalently for $\dot{\gamma}(t)/\gamma_c \ll f_b$, Eq. (4) becomes

$$\dot{\sigma}(t) + f_b \sigma(t) = G\dot{\gamma}(t). \quad (7)$$

Equation (7) is formally analogous to the Maxwell equation, usually written as $\sigma(t) + \lambda(t)\dot{\sigma}(t) = \eta_0 \dot{\gamma}(t)$ with $\lambda = 1/f_b$ and $\eta_0 = G/f_b$. Consequently, all classical results of the *theory of linear viscoelasticity* associated with this model are, in principle, applicable to the case of vibrated granular media (cf § B.2). Equation (5) gives

$$\gamma(t) = \gamma_c \left[\frac{f_b t}{\frac{G\gamma_c}{\sigma}} + \frac{\sigma}{G\gamma_c}\right] = \frac{\sigma}{G}(1 + f_b t) \text{ and } \dot{\gamma}(t) = \frac{f_b \sigma}{G}, \quad (8)$$

with $\ln(1 - \sigma/G\gamma_c) \cong -\sigma/G\gamma_c$, since σ is much smaller than $G\gamma_c$.

By definition, in the limit of small stresses, the response to a step stress is used to determine the creep function $J(t) = \gamma(t)/\sigma$. Equation (8) shows that the expected response is such that $J(t) = (1/G)(1 + f_b t)$. Such a creep function is characteristic of a linear viscoelastic Maxwellian behavior, in agreement with Eq. (7). Furthermore, in full agreement with the properties of a Maxwellian fluid, Eq.(8) reveals that the granular system should behave as a Hookean solid at short times in such a way that $\gamma(t) = \sigma/G = \gamma$ and as a Newtonian fluid at long times so that $\dot{\gamma}(t) = \sigma/\eta_0$, where $\eta_0 = G/f_b$ is the Newtonian viscosity.

(ii) In the absence of vibrations ($f_b = 0$) or for $f_b \ll \dot{\gamma}(t)/\gamma_c$, Eq. (4) becomes

$$\dot{\gamma}(t) = \gamma_c \frac{\dot{\sigma}(t)}{G\gamma_c - \sigma(t)}, \quad (9)$$

which, by integration with respect to γ(t) yields

$$\gamma(t) - \gamma(t_0) = -\gamma_c \ln\left[1 - \frac{\sigma(t)}{G\gamma_c}\right] + \gamma_c \ln\left[1 - \frac{\sigma(t_0)}{G\gamma_c}\right] = -\gamma_c \ln\left[\frac{1 - \frac{\sigma(t)}{G\gamma_c}}{1 - \frac{\sigma(t_0)}{G\gamma_c}}\right]. \quad (10)$$

Equation (10) is only defined for $\sigma(t) \leqslant G\gamma_c$. In other words, Eq. (10) and the differential Eq. (4) from which it originated imply that there is a maximum stress $\sigma_{\max} = G\gamma_c$ that cannot be exceeded, whatever the shear rate $\dot{\gamma}$. It can be shown [23,24] that this maximum stress can be identified to a frictional stress σ_f in agreement with Coulomb's law $\sigma_f = \mu_f \sigma_n = \sigma_{\max}$, where μ_f is the coefficient of friction and σ_n the normal stress. Equation (5) can be written as

$$\gamma(t) = -\gamma_c \ln\left(1 - \frac{\sigma}{G\gamma_c}\right) = \gamma. \quad (11)$$

When the frequency of reorganization f_b is zero, the granular medium is static and must behave like a solid. Equation (11) well captures such a feature and shows that the system behaves as an nonlinear elastic solid for which deformation increases "instantaneously" with the stress. In the limit of very low stresses, a first-order Taylor expansion of Eq. (11) gives $\gamma(t) \cong \sigma/G$, i.e., Hooke's equation that characterizes a linear elastic behavior, consistent with the Maxwellian limit of Eq. (4).

In the following, the consistency of the model was evaluated by fitting the equations derived from the integration of Eq. (4) to experimental data and by comparing the values obtained for the parameters G, η_0, γ_c, and σ_f via the different tests. Figure 4 displays for a vibrated sample, the evolution with time of $\gamma(t)$ for applied stresses of 1, 3, 10, and 30 Pa. A linear deformation is observed in agreement with the prediction of Eqs. (5) and (8). As an illustration, for $\sigma = 10$ Pa, the fit of Eq. (8) yields $\sigma/\eta_0 = 0.0181$ s^{-1} and $\eta_0 = 552$ Pa s, where $\eta_0 = G/f_b$.

Figure 5 displays for nonvibrated samples subjected to stress steps of 1, 3, 10, 20, 30, 40, and 50 Pa, the evolution

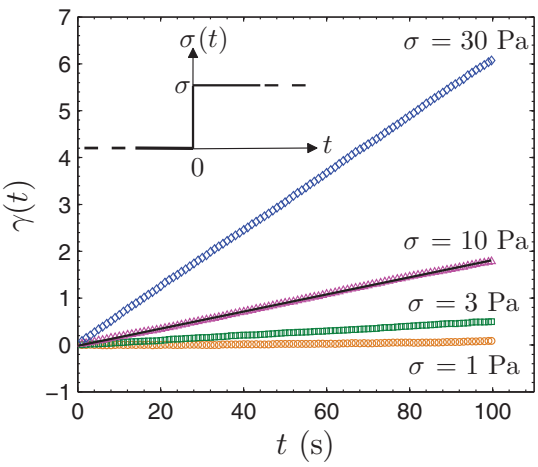


FIG. 4. (Color online) Temporal evolution of the strain $\gamma(t)$ for stress step of 1, 3, 10, and 30 Pa, under vibrations ($f = 50$ Hz and $E_v = 164$ μJ). The solid line materializes the fit of Eq. (8) to the experimental points.

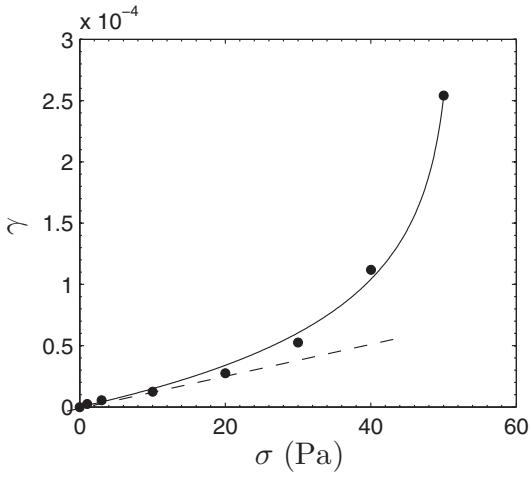


FIG. 5. Evolution of the deformation (γ) as a function of the stress (σ), in the absence of vibration ($f = 0$ Hz and $E_v = 0$ μJ). The solid line materializes the fit of Eq. (11) to the experimental points. The dotted line shows the Hookean limit of the behavior of the sample at low stresses.

of the average strain value (γ) as a function of the imposed stress (σ). The solid line corresponds to the fit of Eq. (11) to the experimental data. The fit yields $\gamma_c = 6.88 \times 10^{-5}$ and $G\gamma_c = 51.3$ Pa $\Rightarrow G = 7.45 \times 10^5$ Pa. The agreement between experimental data and the fitted curve related to Eq. (11) reveals that the model provides an excellent description of the static behavior of the samples up to stress values around 50 Pa. For higher values, stick-slip instabilities perturbing the rheometer loop control start occurring resulting in measurement fluctuations. But when the stress rises above 148 Pa, a steady, frictional flow appears. Since the shear rate is now constant, an effective viscosity can now be calculated, and this viscosity is shown in Fig 6. It is worth noting that the

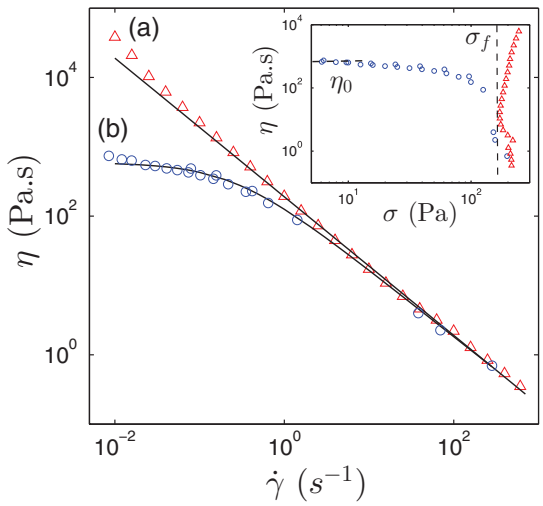


FIG. 6. (Color online) Evolution of the viscosity (η) in steady-state regime as a function of the shear rate ($\dot{\gamma}$): (a) without vibrations ($f = 0$ Hz and $E_v = 0$ μJ), (b) under vibration ($f = 50$ Hz and $E_v = 164$ μJ). The solid lines materialize the fit of Eq. (6) to the experimental points. Inset, the same data were plotted against the shear stress.

experiment of Fig. 5 corresponds to a static regime, until the frictional stress is reached leading to the frictional flow regime observed in Fig. 6(a). Stick-slip instabilities mark the transition between these two regimes. It also appears that in the low stress limit ($\sigma < 20$ Pa), a Hookean behavior is obtained in agreement with Eq. (11).

As previously mentioned, step stress experiments can be used to extract the evolution of viscosity $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$, as a function of shear rate. Figure 6 displays the results of such a measurement, with and without vibrations, in steady-state flow regime, contrary to the previous experiment. In this figure the solid line corresponds to the fit of Eq. (6) to the experimental data. The fit of Eq. (6) to curve (b) yields to $\eta_0 = G/f_b = 592$ Pa s and $\dot{\gamma}_c = \gamma_c f_b = 0.25\ \mathrm{s}^{-1} \Rightarrow \sigma_f = \eta_0\dot{\gamma}_c = G\gamma_c = 148$ Pa. This value of σ_f matches the value found by fitting Eq. (6) to curve (a) since curves (a) and (b) collapse beyond $\dot{\gamma} = 10\ \mathrm{s}^{-1}$. The value of η_0 thus determined (592 Pa s) is, considering experimental errors, very close to that determined from creep tests (552 Pa s). This figure is also evidence of the existence of a Newtonian regime at low stress and of a nonlinear Coulombian one at high stress, features that agree with Eq. (6). The difference between the values of σ_f extracted from Fig. 5 (51.3 Pa) and from Fig. 6 (148 Pa) comes from the fact that both experiments have been performed in two different regimes: a flow regime and a static one. It is worth noting that it is experimentally challenging to extract σ_f, which is a dynamical quantity, from a static experiment via the relation $\sigma_f = G\gamma_c$. Additionally, the divergence of the curve in the vicinity of σ_f hinders a precise numerical determination of its value. Despite these difficulties, both values remain of the same order of magnitude.

2. *Response to a sinusoidal stress*

In the case of a sinusoidal stress defined as $\sigma(t) = \sigma_o\cos(\omega t)$ and $\dot{\sigma}(t) = -\omega\sigma_o\sin(\omega t)$ (Fig. 7), with σ_o the oscillation amplitude and ω the pulsation, useful information can be obtained without a full integration of Eq. (4). Letting $\tan\delta = f_b/\omega$, Eq (4) yields

$$\dot{\gamma}(t) = \gamma_c\frac{\dot{\sigma}(t) + f_b\sigma(t)}{G\gamma_c - \sigma(t)} = -\gamma_c\frac{\omega\sin(\omega t) - f_b\cos(\omega t)}{\frac{G\gamma_c}{\sigma_o} - \cos(\omega t)}$$
$$= -\gamma_c\frac{\left(\omega^2 + f_b^2\right)^{1/2}\sin(\omega t - \delta)}{\frac{G\gamma_c}{\sigma_o} - \cos(\omega t)}. \quad (12)$$

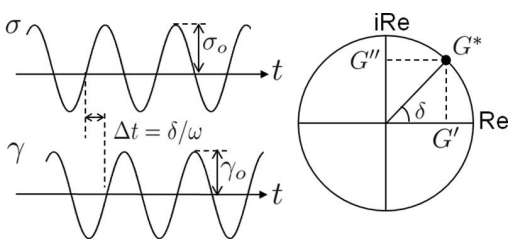


FIG. 7. Measurement principle in oscillatory regime (mechanical spectroscopy).

In the limit of small stresses ($\sigma_o \ll G\gamma_c$) and under vibrations, Eq. (12) yields

$$\dot{\gamma}(t) = -\frac{\sigma_o}{G}\left(\omega^2 + f_b^2\right)^{1/2}\sin(\omega t - \delta)$$
$$\Rightarrow \gamma(t) = \frac{\sigma_o}{\omega G}\left(\omega^2 + f_b^2\right)^{1/2}\cos(\omega t - \delta). \quad (13)$$

Equation (13) could have been obtained directly by solving Maxwell's equation, δ being the phase angle between $\sigma(t)$ and $\gamma(t)$ (Fig. 7) and $\tan\delta = f_b/\omega = 1/(\lambda\omega)$, where $\lambda = 1/f_b$. According to this result, the system should behave as a linear viscoelastic one as long as the denominator of Eq. (12) does not diverge, i.e., for σ_o not too close to $G\gamma_c$, i.e., as long as the system does not enter the frictional regime. Letting $\sigma(t) = \mathrm{Re}\{\tilde{\sigma}(t) = \sigma_o e^{i\omega t}\}$ and $\gamma(t) = \mathrm{Re}\{\tilde{\gamma}(t) = \gamma_o e^{i(\omega t - \delta)}\}$, the resolution of the complex form of Eq. (7) gives, classically,

$$G^*(\omega) = \frac{\tilde{\sigma}(t)}{\tilde{\gamma}(t)} = \frac{\sigma_o}{\gamma_o}e^{i\delta}$$
$$= \frac{G\omega^2\lambda^2}{1 + \omega^2\lambda^2} + i\frac{G\omega\lambda}{1 + \omega^2\lambda^2} = G' + iG'', \quad (14)$$

with

$$G' = G\frac{\omega^2\lambda^2}{1 + \omega^2\lambda^2} \text{ and } G'' = G\frac{\omega\lambda}{1 + \omega^2\lambda^2}. \quad (15)$$

$G' = \frac{\sigma_o}{\gamma_o}\cos\delta$ being the elastic modulus and $G'' = \frac{\sigma_o}{\gamma_o}\sin\delta$ the viscous modulus. Noting that $f_b \in [0; +\infty[$ and $\omega \in [0; +\infty[$ $\Rightarrow \tan\delta \in [0; +\infty[$, one has $\delta \in [0; \pi/2]$, in agreement with Hookean ($\delta = 0$) and Newtonian ($\delta = \pi/2$) limits.

To test the model, we first carried out a stress sweep test, in which the stress amplitude σ_o was varied at a fixed frequency ($\omega = 1$ rad s^{-1}), under vibrations ($f = 50$ Hz and $E_v = 164\ \mu$J). Such an experiment provides values for σ_o, γ_o and the phase angle δ (Fig. 7) that can be directly compared to the predictions of Eq. (12). As in the experimental conditions used (Fig. 4), $75^\circ \leqslant \delta \leqslant 90^\circ$, then $\sin(\omega t - \delta) \cong -\cos(\omega t)$. Consequently, Eq. (12) can be written as

$$\dot{\gamma}_o = \max\{\dot{\gamma}(t)\} \cong \gamma_c\frac{\left(\omega^2 + f_b^2\right)^{1/2}}{\frac{G\gamma_c}{\sigma_o} - 1}. \quad (16)$$

Figure 8 displays the evolution of the maximum amplitude of the strain rate $\dot{\gamma}_o = \omega\gamma_o$ as a function of σ_o. As shown by the solid line plotted in Fig. 8, Eq. (16) accurately fits the experimental data and yields $\gamma_c(\omega^2 + f_b^2)^{1/2} = 0.357\ \mathrm{s}^{-1}$ and $G\gamma_c = \sigma_f = 201$ Pa. This latter value for the frictional stress is close to the value previously obtained $\sigma_f = 148$ Pa in steady-state regime (Fig. 6). Furthermore, low-stress data exhibit a linear dependence on σ_o, whereas for higher stress a clear divergence is observed in agreement with Eq. (16). Figure 8 shows that the linear viscoelastic domain appears to extend up to a critical shear rate value $\dot{\gamma}_c \approx 0.1\ \mathrm{s}^{-1}$ that corresponds to a critical strain $\gamma_c = \dot{\gamma}_c/\omega \approx 0.1$, as $\omega = 1$ rad s^{-1} in the corresponding experiment. It leads to $G = \sigma_f/\gamma_c \approx 2000$ Pa.

Figure 9 corresponds to a frequency sweep test carried out on the same sample under the same vibration energy. In this experiment, the values of G' and G'' are measured for various frequencies ω at a fixed amplitude stress σ_o, the value of which

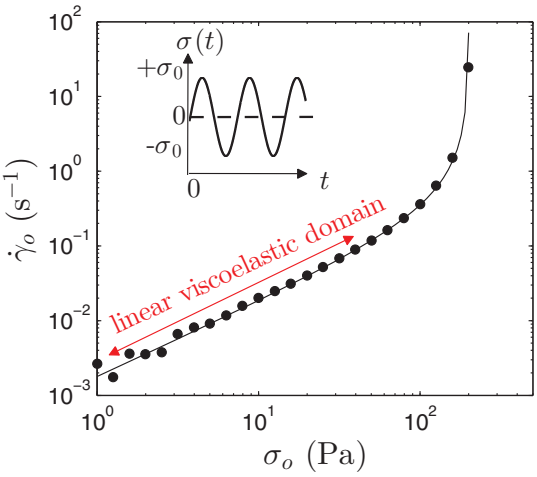


FIG. 8. (Color online) Evolution of the maximum amplitude of the strain rate ($\dot{\gamma}_o$) as a function of the maximum amplitude of the stress (σ_o) for $\omega = 1$ rad s^{-1}, under vibrations ($f = 50$ Hz and $E_v = 164$ μJ). The solid line materializes the fit of Eq. (16) to the experimental points.

(10 Pa) was chosen in the linear viscoelastic domain. The solid lines in Fig. 9 correspond to a fit according to Eq. (15) that yields $G = 1792$ Pa and $\lambda = 0.31$ s. It must be pointed out that the value of G, thus determined, is close to that derived from stress sweep test ($\approx$2000 Pa). Furthermore, these values allow determining $f_b = 1/\lambda = 3.23$ s^{-1} and $\eta_0 = G/f_b = 555$ Pa s. The fact that this latter value is very close to that determined previously from creep experiments illustrates the robustness of the model we propose.

Closer examination of Fig. 9 reveals additional trends. It appears that Eq. (15) captures well the mechanical properties of the system at low ω values, i.e., when the viscous behavior dominates ($G'' > G'$). In this region, G' evolves as ω^2 and G'' as ω in agreement with a Maxwellian behavior. In contrast, data

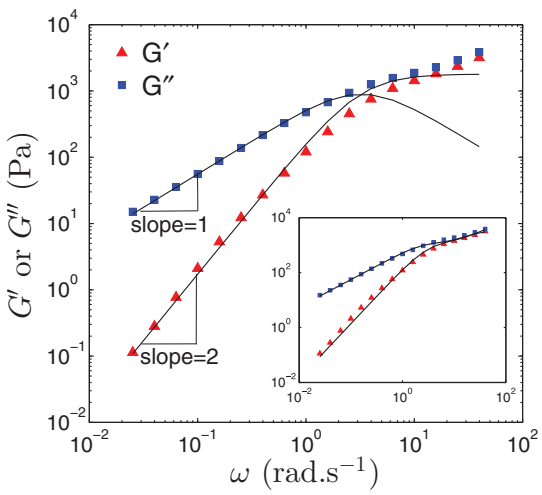


FIG. 9. (Color online) Evolution of the elastic modulus (G') and the viscous modulus (G'') as a function of pulsation (ω) for a maximum stress amplitude $\sigma_o = 10$ Pa, under vibrations ($f = 50$ Hz and $E_v = 164$ μJ). Solid lines materialize the fit of Eqs. (15) and (17) (inset) to the experimental points.

at higher ω values, past the G'/G'' crossover, are not properly described by Eq. (15). Such a discrepancy between model and experiment can be assigned to the fact that our model only considers one mechanism for relaxation processes, whereas, in fact, as in molecular media, two mechanisms should be taken into account: α-relaxation and β-relaxation. The α-process corresponds to the diffusion of grains out of the cage formed by their nearest neighbors. Such a process allows sample flow. It dominates the viscous rheological behavior at low ω values (Fig. 9). The β-process corresponds to the diffusion of grains within the cage formed by their nearest neighbors. The characteristic time t_β corresponding to this latter process is obviously shorter than that of the α-relaxation (t_α) and it may then start playing a role for high pulsations. In order to take into account these two processes, it is possible to introduce two relaxation times, λ_1 and λ_2, and two weighing factors, G_1 and G_2, in the Maxwell model, such as

$$\begin{aligned} G' &= G_1 \frac{\omega^2\lambda_1^2}{1+\omega^2\lambda_1^2} + G_2 \frac{\omega^2\lambda_2^2}{1+\omega^2\lambda_2^2} \\ G'' &= G_1 \frac{\omega\lambda_1}{1+\omega^2\lambda_1^2} + G_2 \frac{\omega\lambda_2}{1+\omega^2\lambda_2^2}. \end{aligned} \tag{17}$$

Letting $\lambda_1 = t_\alpha$, $\lambda_2 = t_\beta$ and remembering that $f = 50$ Hz and that f_b was estimated to 3.23 s^{-1} in the low ω region yields $\lambda_1 = t_\alpha = f_b^{-1} = 0.31$ s and $\lambda_2 = t_\beta = f^{-1} = 0.02$ s. Using such values of λ_1 and λ_2 in Eq. (17) leads to $G_1 = 1400$ Pa and $G_2 = 6000$ Pa. As shown in Fig. 9, considering two relaxation processes significantly improves the agreement between model and experiments. Considering two characteristic times was, however, not required for the modeling of creep experiments. This is likely due to the fact that creep tests provide accurate rheological information for long times only. Due to inertial effects in the rheometer and to the times associated to signal acquisition, creep tests cannot be used reliably to investigate processes with short characteristic times.

In order to provide an overview of the results of the different experiments, Table I displays the numerical values of the model parameters determined by adjustment to experimental points, without vibrations and with vibrations for a vibration energy $E_v = 164$ μJ. The dependence of the model parameters, i.e., the shear modulus (G), the critical strain (γ_c), and the Brownian frequency reorganization of the grains (f_b) with the vibration energy (E_v) is shown in Appendix A.

IV. CONCLUSIONS AND PERSPECTIVES

On the basis of simple experimental procedures, and using a few reasonable assumptions, we have been able to derive an elementary differential equation that is able to capture various rheological behaviors (in transient or steady-state regimes and in the presence and absence of vibrations) using three independent parameters only (G, γ_c, f_b). The exact solution of the model takes the form of a constitutive equation relating stress to strain from which all rheological properties can be derived. The solution predicts viscous (Newtonian) and frictional (Coulombian) regimes, as well as elastic linear (Hookean) and nonlinear behaviors that are qualitatively and quantitatively in agreement with experiments. Within experimental errors, parameters values are independent of the type of test used (linear, nonlinear, permanent, transient, or oscillatory).

TABLE I. Numerical values of the model parameters, with vibrations (up) and without vibrations (down). Numbers in brackets have been obtained on the basis of the value $\gamma_c = 0.1$, determined in oscillatory regime.

$f = 50$ Hz $E_v = 164\ \mu$J	G (Pa)	f_b (s^{-1})	γ_c (-)	$\eta_0 = G/f_b$ (Pa s)	$\sigma_f = G\gamma_c$ (Pa)	$\dot{\gamma}_c = \gamma_c f_b$ (s^{-1})
Creep tests (Figs. 4 * and 6‡)	(1480)	(2.50)	(0.1)	552*–592‡	148	0.25
Oscillatory tests (Figs. 8¶ and 9†)	2000¶–1792†	3.23	0.1	555	179¶–201†	0.323
$f = 0$ Hz $E_v = 0\ \mu$J	G (Pa)	f_b (s^{-1})	γ_c (-)	$\eta_0 = G/f_b$ (Pa s)	$\sigma_f = G\gamma_c$ (Pa)	$\dot{\gamma}_c = \gamma_c f_b$ (s^{-1})
Creep tests (Figs. 5⁕ and 6‡)	7.45×10^{5}	0	6.88×10^{-5}	∞	51.3⁕–148‡	0

These results strongly suggest that the rheological response of vibrated granular media, subjected to nonstationary stress, can be described by a simple "two-states model" related to the inherent bimodal behavior of chain forces [13–16]. They also tend to show that the dynamics of vibrated granular materials can be viewed as a kinetic process based on transitions from a "strong state," which ensures momentum transport, to a flowing state. Hopping rates then depend on the intensity of both shear and vibration. We have shown that the high-frequency (short-time) behavior could be described by introducing two relaxation times in the Maxwell model related to the α and β relaxation processes commonly observed in granular matter [48,49].

A particularly noteworthy aspect of the present study is related to the fact that the model is able to capture both flow experiments and mechanical spectroscopy ones. This is generally not achieved in the rheological modeling of molecular or colloidal systems. Most common rheological models, such as SGR or STZ, fail to include local flow and plastic events in a coarse-grained variable in a continuous field. Another loophole in most existing models lies in the introduction of an effective temperature, the meaning of which is often rather obscure. This effective temperature, associated to the noise level in the medium, controls the degrees of freedom whose changes cause the system to move from one energy minimum to another in a continuous energy landscape. Such difficulty is ironed out in the present paper for granular matter subjected to vibrations. In this case, granular reorganization is controlled by applied vibrations at low stress that correspond to an external temperature as discussed by D'Anna *et al.* [33]. Our model describes the macroscopic behavior of granular matter regardless of nonlocal flows effects mentioned in the literature [50–52]. The main reason is that a potential localization of the flow also leads to a frictional behavior, which is captured by the model. Moreover, our results suggest that these nonlocal flow effects vanish in the regime controlled by vibrations where the flow remains Newtonian.

In the near future, it would be of interest to try to extend this model to saturated granular suspensions. In such systems, understanding the viscoelastic behavior will require taking into account, in addition to vibrations, effects related to the viscosity of the interstitial fluid. We recently evidenced coupling between these two parameters [53] and it would be particularly relevant to see if the viscosity of the suspending fluid could be introduced in a kinetic equation [Eq. (3)], to derive for granular suspensions a similar self-consistent approach as that derived for dry granular systems.

APPENDIX A: EVOLUTION OF THE MODEL PARAMETERS (G, γ_c, f_b) AS A FUNCTION OF THE VIBRATION ENERGY E_v

Creep tests and mechanical spectroscopy experiments were also carried out for different values of vibration energies, ranging from 0 to 742 μJ. For each applied energy, the adjustment of the model to the experimental data allows us to obtain G, γ_c, and f_b. Figure 10 shows the evolution of these parameters as a function of the vibration energy.

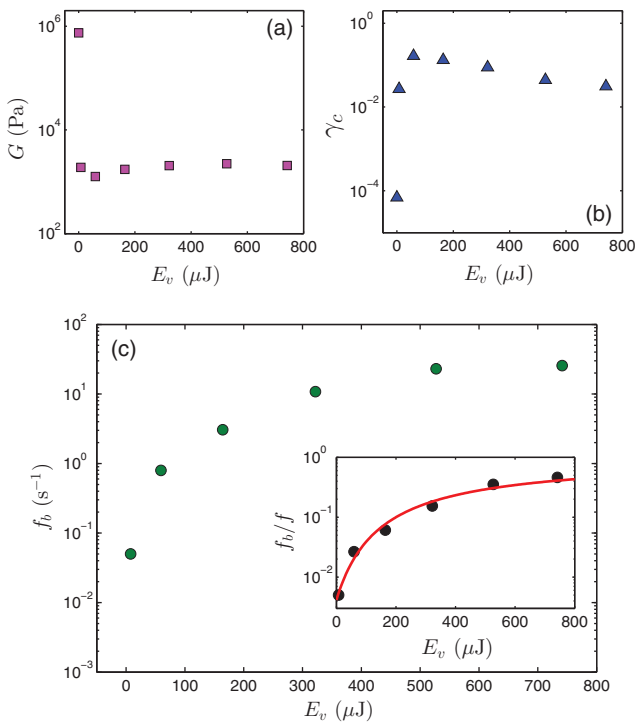


FIG. 10. (Color online) Evolution of the model parameters, i.e., (a) the shear modulus (G), (b) the critical strain, and (c) the Brownian reorganization frequency of the grains (f_b), as a function of the vibration energy (E_v). In the inset, symbols represent the evolution of f_b/f, with f the vibration frequency, as a function of E_v, and the solid line represents the fit of Eq. (A1) to the experimental points.

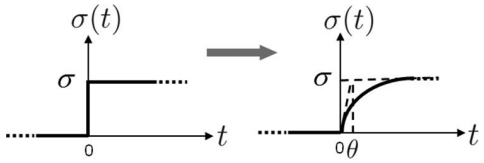


FIG. 11. Substitution of a stress step by an exponential function.

Under vibrations ($E_v > 0$ μJ), the shear modulus G [Fig. 10(a)] and the critical strain γ_c [Fig. 1(b)] are constant and are nearby equal to 2000 and 0.1 Pa, respectively. The application of vibrations, even of low energy, change dramatically the values of G and γ_c. Indeed, G falls from 7.45×10^{5} Pa without vibrations to around 2000 Pa with vibrations and γ_c increases from 6.88×10^{-5} Pa without vibrations to around 0.1 Pa with vibrations. This effect has already been highlighted by Marchal *et al.* [24], by showing that any finite amplitude vibration suppressed the yield stress and led to a viscosity plateau.

Contrary to G and γ_c, the reorganization frequency f_b is not constant under vibrations ($E_v > 0$ μJ) and increases with E_v, as mentioned in Sec. III A and as shown by Marchal *et al.* [24]. Knowing that $f_b = G/\eta_0$, the combination of Eqs. (11) and (31) presented in Ref. [24] leads to

$$f_b = f \exp\left[\frac{-\varepsilon_2}{E_v + \varepsilon_3\left(\frac{\phi_m - \phi_{\rm rcp}}{\phi_m}\right)}\right], \tag{A1}$$

where ε_2 and ε_3 are constants, f is the vibration frequency, ϕ_m is the maximum packing fraction (=0.74), and $\phi_{\rm rcp}$ is the random close packing fraction (=0.62).

In the inset of Fig. 10(c), the experimental data are correctly fitted to Eq. (A1) with $\varepsilon_2 = 794$ μJ and $\varepsilon_3 = 893$ μJ, which proves the robustness of the model presented in Ref. [24].

APPENDIX B: DERIVATION OF EQUATION (5)

In the case of a stress step defined as $\sigma(t) = 0$ for $t < 0$ and $\sigma(t) = \sigma$ for $t > 0$ (Fig. 11), the choice of the initial value $\sigma(t = 0)$ is arbitrary and the derivative $\dot{\sigma}(t = 0)$ is discontinuous. In linear situations, these signals are easily treated by Laplace transform and integration of Eq.(4), which reduces to Maxwell equation, is no problem. In contrast, the incorporation of the term $\dot{\gamma}(t)/\gamma_c$ introduces nonlinearity, which invalidates the application of these methods.

In this case, the differential Eq. (4) can be integrated using functions more regular, continuous, and unambiguously defined at $t = 0$ tending toward a step when a temporal parameter θ tends to zero. In the present situation, the stress step can be replaced by an exponential function such as $\sigma(t) = 0$ for $t \leqslant 0$ and $\sigma(t) = \sigma(1 - e^{-t/\theta})$ for $t \geqslant 0$. By incorporating the exponential function $\sigma(t) = \sigma(1 - e^{-t/\theta})$ in Eq. (4) one obtains

$$\begin{aligned}\dot{\gamma}(t) &= \gamma_c \frac{\dot{\sigma}(t) + f_b\sigma(t)}{G\gamma_c - \sigma(t)} = \gamma_c \frac{\frac{\sigma}{\theta}e^{-t/\theta} + f_b\sigma(1 - e^{-t/\theta})}{G\gamma_c - \sigma(1 - e^{-t/\theta})} \\ &= \gamma_c \frac{\left(\frac{\sigma}{\theta} - f_b\sigma\right)e^{-t/\theta} + f_b\sigma}{(G\gamma_c - \sigma) + \sigma e^{-t/\theta}} \\ &= \gamma_c \frac{\left(\frac{1}{\theta} - f_b\right)e^{-t/\theta}}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right) + e^{-t/\theta}} + \gamma_c \frac{f_b}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right) + e^{-t/\theta}}.\end{aligned} \tag{B1}$$

Noting that $\int \frac{e^{cx}}{a+be^{cx}}\,dx = \frac{1}{bc}\ln(a + be^{cx})$ and $\int \frac{dx}{a+be^{cx}} = \frac{x}{a} - \frac{1}{ac}\ln(a + be^{cx})$, it follows that

$$\begin{aligned}\gamma(t) &= \gamma_c \frac{f_b t}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right)} - \theta \ln\left[\frac{1}{\gamma_c}\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right) + \frac{1}{\gamma_c}e^{-t/\theta}\right] \\ &\quad \times \left[\gamma_c\left(\frac{1}{\theta} - f_b\right) - \gamma_c \frac{f_b}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right)}\right] + \text{cte} \\ &= \gamma_c \frac{f_b t}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right)} - \ln\left[\frac{1}{\gamma_c}\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right) + \frac{1}{\gamma_c}e^{-t/\theta}\right] \\ &\quad \times \left[\gamma_c(1 - \theta f_b) - \gamma_c \frac{\theta f_b}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right)}\right] + \text{cte}.\end{aligned} \tag{B2}$$

Letting $\gamma(0) = 0$, one obtains

$$\text{cte} = \ln\frac{G}{\sigma}\left[\gamma_c(1 - \theta f_b) - \gamma_c \frac{\theta f_b}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right)}\right]. \tag{B3}$$

Differentiating $\gamma(t)$ before letting θ tending toward 0, it can be verified that Eq. (B2) is indeed a solution of Eq. (4) with $\sigma(t) = \sigma(1 - e^{-t/\theta})$. When $\theta \to 0$, $\sigma(t)$ tends toward a step function such as $\sigma(t) = \sigma$ for $t > 0$, as a result cte $\to \gamma_c \ln(G/\sigma)$ and

$$\begin{aligned}\gamma(t) &= \gamma_c \frac{f_b t}{\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right)} - \gamma_c \ln\frac{1}{\gamma_c}\left(\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1\right) + \gamma_c \ln\left(\frac{G}{\sigma}\right) \\ &= \gamma_c\left[\frac{f_b t}{\frac{G\gamma_c}{\sigma} - 1} - \ln\left(1 - \frac{\sigma}{G\gamma_c}\right)\right] + \text{cte}.\end{aligned} \tag{B4}$$

[1] P. Sollich, F. Lequeux, P. Hebraud, and M. E. Cates, Phys. Rev. Lett. **78**, 2020 (1997).

[2] P. Sollich, Phys. Rev. E **58**, 738 (1998).

[3] J.M. Brader, M. Siebenburger, M. Ballauff, K. Reinheimer, M. Wilhelm, S. J. Frey, F. Weysser, and M. Fuchs, Phys. Rev. E **82**, 061401 (2010).

[4] E. Bouchbinder and J. S. Langer, Phys. Rev. E **83**, 061503 (2011).

[5] R. P. Behringer, D. Bi, B. Chakraborty, S. Henkes, and R. R. Hartley, Phys. Rev. Lett. **101**, 268301 (2008).

[6] G. Midi, Eur. Phys. J. E **14**, 341 (2004).

[7] Y. Forterre and O. Pouliquen, Annu. Rev. Fluid. Mech. **40**, 1 (2008).

[8] K. A. Reddy, Y. Forterre, and O. Pouliquen, Phys. Rev. Lett. **106**, 108301 (2011).

[9] C. H. Liu, S. R. Nagel, D. A. Schecter, S. N. Coppersmith, S. Majumdar, O. Narayan, and T. A. Witten, Science **269**, 5223 (1995).
[10] J. H. Snoeijer, T. J. H. Vlugt, M. vanHecke, and W. vanSaarloos, Phys. Rev. Lett. **92**, 054302 (2004).
[11] S. Ostojic, E. Somfai, and B. Nienhuis, Nature (London) **439**, 828 (2006).
[12] L. Staron and F. Radjai, Phys. Rev. E **72**, 041308 (2005).
[13] S. Deboeuf, O. Dauchot, L. Staron, A. Mangeney, and J. P. Vilotte, Phys. Rev. E **72**, 051305 (2005).
[14] V. Y. Zaitsev, P. Richard, R. Delannay, V. Tournat, and V. E. Gusev, Europhys. Lett. **83**, 64003 (2008).
[15] S. K. de Richter, V. Y. Zaitsev, P. Richard, R. Delannay, G. L. Caer, and V. Tournat, J. Stat. Mech. (2010) P11023.
[16] F. Radjai, D. E. Wolf, M. Jean, and J. J. Moreau, Phys. Rev. Lett. **80**, 61 (1998).
[17] G. H. Darwin, Minutes of Proceedings of Institute of Civil Engineering **71**, 350 (1883).
[18] P. G. de Gennes, Physica A **261**, 267 (1998).
[19] L. Vanel, D. W. Howell, D. Clark, R. P. Behringer, and E. Clement, Phys. Rev. E **60**, R5040 (1999).
[20] P. Marchal, A. Barois-Cazenave, and L. Choplin, Les Cahiers de Rhéologie **16**, 143 (1999).
[21] P. Marchal, Ph.D. thesis, Institut Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 2002.
[22] P. Marchal, N. Smirani, and L. Choplin, in *39ème Colloque Annuel du Groupe Francais de Rhéologie* (Mulhouse, France, 2004).
[23] P. Marchal, L. Choplin, and N. Smirani, *Rhéologie des milieux granulaires denses vibrés*, Vol. 14 (Les Cahiers de Formulation, Formulation des solides divisés, EDP Sciences, 2009), pp. 139–151.
[24] P. Marchal, L. Choplin, and N. Smirani, J. Rheol. **53**, 1 (2009).
[25] E. Clement and J. Rajchenbach, Europhys. Lett. **16**, 133 (1991).
[26] G. D'Anna and G. Gremaud, Nature (London) **413**, 407 (2001).
[27] G. D'Anna and G. Gremaud, Phys. Rev. Lett. **87**, 254302 (2001).
[28] P. Philippe and D. Bideau, Europhys. Lett. **60**, 677 (2002).
[29] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel, Phys. Rev. E **51**, 3957 (1995).
[30] S. K. de Richter, G. L. Caer, and R. Delannay, J. Stat. Mech. (2012) P04013.
[31] S. K. de Richter, G. L. Caer, and R. Delannay, EPL **85**, 58004 (2009).
[32] J. A. Dijksman, G. H. Wortel, L. T. H. vanDellen, O. Dauchot, and M. vanHecke, Phys. Rev. Lett. **107**, 108303 (2011).
[33] G. D'Anna, P. Mayor, A. Barrat, V. Loreto, and F. Nori, Nature (London) **424**, 909 (2003).
[34] G. D'Anna, P. Mayor, G. Gremaud, A. Barrat, and V. Loreto, Europhys. Lett. **61**, 60 (2003).
[35] G. D'Anna and P. Mayor, Physica A **325**, 267 (2003).
[36] P. Marchal, L. Choplin, and N. Smirani, US Patent 6 **971**, 262 (2005).
[37] S. F. Edwards and R. B. S. Oakeshott, Physica A **157**, 1080 (1989).
[38] D. S. Dean and A. Lefevre, Phys. Rev. Lett. **90**, 198301 (2003).
[39] T. Aste and T. DiMatteo, Phys. Rev. E **77**, 021309 (2008).
[40] S. McNamara, P. Richard, S. K. deRichter, G. LeCaer, and R. Delannay, Phys. Rev. E **80**, 031301 (2009).
[41] J. Duran, *Sands, Powders, and Grains: An Introduction to the Physics of Granular Materials*, Vol. 216 (Springer, Berlin, 2000), p. 293.
[42] O. Reynolds, Philos. Mag. Soc. **20**, 469 (1885).
[43] O. Reynolds, Proceedings of the Royal Institution of Great Britain, Read, February 12, 1886 (unpublished).
[44] P. de Gennes, J. Colloid Interface Sci. **226**, 1 (2000).
[45] Markovian stationary processes.
[46] Molecular chaos assumption of Boltzmann.
[47] P. Coussot, *Rhéophysique des pâtes et des suspensions* (EDP Sciences/CNRS Editions, Les Ulis, 1999).
[48] G. Marty and O. Dauchot, Phys. Rev. Lett. **94**, 015701 (2005).
[49] P. M. Reis, R. A. Ingale, and M. D. Shattuck, Phys. Rev. Lett. **98**, 188301 (2007).
[50] D. M. Mueth, G. F. Debregeas, G. S. Karczmar, P. Eng, S. R. Nagel, and H. M. Jaeger, Nature **406**, 385 (2000).
[51] A. Fall, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn, Phys. Rev. Lett. **103**, 178301 (2009).
[52] K. Kamrin and G. Koval, Phys. Rev. Lett. **108**, 178301 (2012).
[53] C. Hanotin, S. Kiesgen de Richter, P. Marchal, L. J. Michot, and C. Baravian, Phys. Rev. Lett. **108**, 198301 (2012).

Résumé : Rhéophysique des suspensions granulaires vibrées

Quantifier l'impact des vibrations sur les propriétés rhéologiques des suspensions granulaires trouve son intérêt en géophysique et dans de nombreux secteurs industriels. Par exemple, les mécanismes de liquéfaction des sols sous l'effet d'une secousse demeurent mal connus à ce jour. L'objet de cette thèse est d'apporter une compréhension fondamentale des modifications induites par les vibrations sur les propriétés physiques et mécaniques d'un système modèle composé de billes de verre sphériques et monodisperses immergées dans un fluide newtonien en concentration dense ($\phi \approx 0.61$). Dans un premier temps, le comportement rhéologique macroscopique global des suspensions a été étudié à l'aide d'un rhéomètre couplé à une cellule vibrante. Les vibrations font disparaître la contrainte seuil du matériau et font apparaître un plateau newtonien contrôlé par une compétition entre les contraintes de lubrification et les contraintes frictionnelles. Un autre type d'expérience, la rhéométrie à chute de bille par Imagerie par Résonance Magnétique, montre des résultats similaires. Dans un second temps, la dynamique de réorganisation locale des grains a été sondée grâce à des expériences de diffusion de la lumière faisant appel à une caméra CCD et fondées sur l'analyse des fluctuations d'intensité des figures de speckle. Cette technique a permis de sonder la dynamique des particules aux temps longs. Il est apparu que le temps caractéristique de relaxation obtenu est relié à la viscosité au plateau newtonien de la suspension granulaire vibrée, ce qui a permis d'établir un lien entre le comportement rhéologique macroscopique des échantillons et la dynamique diffusionnelle à l'échelle du grain.

Mots-clés: suspension granulaire, vibrations, rhéologie, diffusion multiple de lumière, diffusion de lumière multispeckle, Imagerie par Résonance Magnétique, modélisation

Abstract : Rheophysics of vibrated granular suspensions

Quantify the impact of vibrations on the rheological properties of granular suspensions is of paramount importance in many environmental or industrial areas. For example, the soil liquefaction mechanisms, as a result of an earthquake, remain poorly understood by now. The purpose of this thesis is to provide a fundamental understanding of the modifications induced by the vibrations on physical and mechanical properties of a model concentrated suspension ($\phi \approx 0.61$), made up of spherical monodisperse glass beads immersed in a Newtonian fluid. In a first step, the macroscopic rheological behavior of this system has been studied using a classical rheometer coupled with a vibrating cell. The vibrations induce the vanishing of the yield stress of the material and the emergence of a Newtonian plateau at low shear. Thus, it has been shown that the viscosity of the suspension is controlled by a competition between lubrication and frictional stresses. Another type of experiment, the falling ball rheometry by Magnetic Resonance Imaging, shows similar results. In a second step, the local dynamics of the grains was probed by diffusing wave spectroscopy using a CCD camera based on the analysis of the intensity fluctuations of speckle patterns. This technique allowed to probe the dynamics of particles at long times. It appears that the characteristic relaxation time obtained is related to the suspension viscosity, thereby linking the macroscopic rheological properties to the diffusional dynamics at the grain scale.

Keywords: granular suspension, vibrations, rheology, diffusing wave spectroscopy, multispeckle diffusing wave spectroscopy, Magnetic Resonance Imaging, modeling