



**Titre:** Comportement rhéologique non-linéaires des suspensions  
concentrées de particules non-colloïdales

**Auteur:** Frédéric Cotton

**Date:** 1998

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Cotton, F. (1998). Comportement rhéologique non-linéaires des suspensions  
concentrées de particules non-colloïdales [Master's thesis, École Polytechnique de  
Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/6884/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/6884/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de  
recherche:** Pierre Carreau, & Michel Perrier  
Advisors:

**Programme:** Unspecified  
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE NON-LINÉAIRE DES SUSPENSIONS  
CONCENTRÉES DE PARTICULES NON-COLLOÏDALES

FRÉDÉRIC COTTON  
DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES  
(GÉNIE CHIMIQUE)  
DÉCEMBRE 1998



National Library  
of Canada

Acquisitions and  
Bibliographic Services

395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

Bibliothèque nationale  
du Canada

Acquisitions et  
services bibliographiques

395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

*Your file Votre référence*

*Our file Notre référence*

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-38669-4

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE NON-LINÉAIRE DES SUSPENSIONS  
CONCENTRÉES DE PARTICULES NON-COLLOÏDALES

présenté par : COTTON Frédéric

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. LAFLEUR Pierre G., Ph.D, président

M. CARREAU Pierre J., Ph.D. membre et directeur de recherche

M. PERRIER Michel, Ph.D. membre et codirecteur de recherche

M. AJJI Abdellah, Ph.D. membre

Toute réponse constitue une prise d'angereuse sur l'univers.  
Malgré une apparence sensée, elle n'explique peut-être rien.

Frank Herbert

### **Remerciements**

Je remercie mes deux directeurs, Messieurs Pierre Carreau et Michel Perrier pour l'aide, le support et la confiance qu'ils m'ont accordés.

Je veux aussi particulièrement remercier Florence Yziquel et Paul-André Lavoie pour m'avoir enseigné tout ce que je sais sur la rhéométrie et le maniement des rhéomètres.

Je m'en voudrais de ne pas saluer la bande de joyeux lurons du CRASP et du département de génie chimique, pour tous les à-côtés de la maîtrise qui ont rendu ces deux années aussi agréables.

## RÉSUMÉ

Les suspensions concentrées occupent une place importante dans le milieu industriel. Toutefois, certaines de leurs propriétés rhéologiques ne sont pas encore expliquées de façon satisfaisante. La compréhension des propriétés rhéologiques des suspensions concentrées est intimement liée au comportement des particules.

Dans ce projet de maîtrise on se propose donc, comme premier objectif, de définir et de caractériser le comportement rhéologique des suspensions concentrées par des essais expérimentaux sur des suspensions modèles lors d'écoulements simples et bien définis. On tente ensuite de relier les phénomènes observés à la présence des particules pour tenter d'en comprendre les mécanismes. L'objectif final est, à la suite de toutes les observations, d'émettre des hypothèses permettant d'expliquer les phénomènes rhéologiques se produisant avec les suspensions concentrées.

Les suspensions ont été choisies dans le but d'obtenir des systèmes qui soient les plus simples possible. Cela a été réalisé en s'assurant que les particules n'aient pas d'interaction entre elles, autres que les interactions hydrodynamiques causées par l'écoulement, et que le fluide matriciel soit newtonien. De plus, l'écart entre la densité des particules et celle du fluide doit être faible pour éviter la sédimentation ou la flottaison des particules durant la période de temps nécessaire à la réalisation d'un essai. La suspension retenue consiste en un mélange de particules de verre (sphericel), sphériques et creuses, d'environ 8  $\mu\text{m}$  de diamètre dans du polybutène de faible masse

moléculaire, liquide à la température de la pièce. Des essais ont aussi été effectués avec deux autres types de particules.

Le comportement rhéologique des suspensions a été étudié en fluage, en démarrage et en dynamique. Tous ces essais ont permis de mettre en évidence la formation d'une structure de particules lorsque la suspension est soumise à un cisaillement.

Les essais en fluage et en démarrage ont montré que la formation de cette structure provoque une augmentation importante de la viscosité de la suspension jusqu'à un palier dont la valeur peut représenter jusqu'au double de la viscosité de la suspension à son état isotrope. Par exemple, pour une fraction volumique de particules de 0,50, la viscosité de la suspension augmente de 250 jusqu'à 600 Pa.s. La structure est formée par la rencontre des particules qui, en se bloquant les unes les autres, forment un ensemble de particules plus rigide nuisant à la mobilité de la suspension. Dans un écoulement en cisaillement simple, c'est le gradient de vitesse des particules qui provoque leur rapprochement. Puisque deux particules légèrement décalées l'une par rapport à l'autre, selon l'axe perpendiculaire à l'écoulement, ont des vitesses de translation différentes, il est inévitable que ces particules se rapprochent l'une de l'autre. Lorsque qu'elles se rencontrent, les particules auront tendance à se repousser et à se repositionner l'une au dessus de l'autre. Par contre, si la suspension est suffisamment concentrée, ce repositionnement sera bloqué par les autres particules voisines. C'est ce blocage des particules entre elles qui est à l'origine de la formation de la structure.



Les essais en démarrage ont permis de mettre en évidence les forces de répulsion hydrodynamiques entre les particules par la mesure des contraintes normales générées par les échantillons de suspensions sous cisaillement. Lorsque la structure est complètement établie, la suspension est dans un état où toutes les particules tentent de trouver une position équilibrant les forces qui agissent sur elles. C'est pourquoi l'atteinte du palier en contraintes normales se produit simultanément avec l'atteinte du palier de viscosité. Les contraintes normales et les vitesses de cisaillement peuvent être reliées par une relation de type loi de puissance.

La formation de la structure est un phénomène qui se produit toujours lorsque la suspension a subi une certaine déformation critique, identique quelque soit la vitesse de cisaillement imposée. Il a été possible, par une méthode fort simple, d'obtenir une prédiction satisfaisante de la valeur de cette déformation critique. Cette méthode s'appuie sur l'hypothèse que la déformation critique dépend uniquement de la position relative des particules les unes par rapport aux autres. La valeur de la déformation critique se situe entre 0,25 et 0,15 pour des fractions volumiques allant de 0,40 à 0,55.

Il a aussi été montré que la structure créée par cisaillement est orientée dans la direction de l'écoulement de la suspension et qu'elle ne se forme pas de façon aléatoire. Lorsque l'on inverse le sens de l'écoulement, la structure est détruite et peut être reconstruite dans l'autre direction si on impose une déformation suffisante. La formation de la structure est donc un phénomène réversible. Par contre, la structure obtenue ne semble pas entièrement stable. Lorsque soumis à une déformation trop

importante, l'échantillon se creuse et une petite partie de la suspension sort de l'entrefer de l'élément de mesure. Cela peut être relié au bris de la structure.

Les essais en dynamique ont montré l'apparition d'un comportement élastique pour les suspensions concentrées lors de la formation de la structure. Lorsque l'amplitude de la déformation atteint un niveau correspondant à la déformation critique, le module élastique de la suspension connaît une augmentation assez spectaculaire. À une amplitude de la déformation quelque peu supérieure, le module visqueux augmente lui aussi mais de façon moins spectaculaire. Le niveau important atteint par le module élastique signifie que la structure accumule de l'énergie de façon réversible. Cette énergie est probablement récupérée lors du bris de la structure, ce qui pourrait peut être expliquer le phénomène de creusement de l'échantillon lorsque la quantité d'énergie emmagasinée devient trop élevée.

L'augmentation du module élastique est toujours accompagnée d'une modification de la forme du signal de déformation, qui s'éloigne de la forme parfaitement sinusoïdale. L'observation de la forme du signal de déformation, permet de penser que l'écoulement de la suspension est freiné par la formation de la structure, ce qui induit probablement à la suspension un comportement de type fluide à seuil de contrainte.

Lors du cisaillement de la suspension, les particules peuvent exécuter deux types de mouvement : un mouvement de rotation et un mouvement de translation, tous deux dans le sens de l'écoulement. Si l'amplitude de la déformation de l'échantillon est

relativement faible, ce sont les effets du mouvement de rotation qui prédominent. La rotation de la particule entraîne le fluide qui l'entoure. Lorsque deux particules sont suffisamment rapprochées, ces courants de fluide se rencontrent et repoussent les particules l'une de l'autre. Ce phénomène tend à rendre la suspension isotrope et à en réduire la viscosité. Par contre, pour des amplitudes de déformation élevées, les effets du mouvement de translation deviennent dominants et il y a alors formation de la structure de particules.

## ABSTRACT

Concentrated suspensions are of great industrial importance. However, not all of their rheological properties are well understood. The understanding of the rheological properties of concentrated suspensions are closely related to the behavior of the particles.

The primary objective of this project was to define and characterize the rheological behavior of concentrated suspensions with experiments on model suspensions in simple and well defined types of flow. Then, we have tried to relate the observed phenomena and the presence of particles. The final objective was to find explanation for the rheological behavior of concentrated suspensions.

The suspensions had been chosen to obtain the simplest systems possible, using particles without any significant non-hydrodynamic interactions and a Newtonian fluid. The density of the particles and the fluid were close to get rid of any problems of settling or buoyancy of the particles. The suspension was a mixture of hollow spherical glass particles (sphericel), with a diameter of 8  $\mu\text{m}$ , in a low molecular weight polybutene, liquid at room temperature. Test were also done with other types of suspensions.

The rheological behavior of the suspensions have been studied in creep, rate step and dynamic tests. All these tests showed the formation of a structure of particles when the suspensions were sheared.

The creep and rate step tests show that the formation of this structure causes an increase in the viscosity of the suspension up to a plateau that could be as much as twice the value of the viscosity of the homogeneous suspensions. For example, at a volume fraction in particles of 0,50, the viscosity increased from 250 up to 600 Pa.s. The formation of the structure of particles inhibits the motion of surrounding particles creating an overall decrease of mobility within the suspensions. In simple shear flow, the velocity gradient of the suspensions creates a clustering effect. Two particles at slightly different height along the flow gradient will have different translation speed and, as a result, they will come closer together. When they make contact, the particles are pushed apart and reposition themselves one on top of the other. If the suspension is concentrated, this movement is blocked by the neighboring particles, creating the structure.

With the step rate tests, we have been able to show the hydrodynamic repulsion forces between the particles by measuring the normal stress generated by the suspensions under shear. When the structure is completely established, the suspension is in equilibrium where the particles are in a position of equal forces acting on them. As a result, the plateau in normal stress occurs simultaneously with the plateau in viscosity. There seems to be a power law relation between the normal stress and the shear rate.

The formation of the structure always begins when the suspension has sustained a critical deformation that is approximately independent of the shear rate. It is possible, with a very simple method, to predict the value of this critical deformation. This method

is based on the hypothesis that the critical deformation depends only on the relative position of the particles. The critical deformation is in the range of 0,25 to 0,15 for volume fractions 0,40 to 0,55.

It also had been shown that structure induced by shear is oriented in the flow direction and does not occur randomly. When the direction of the flow is reversed, the structure is destroyed and can be rebuilt in the other direction if the deformation is sufficient. The formation of the structure is a reversible phenomenon, but it is not entirely stable. When the suspension sustain a much larger deformation, the sample is unstable and a small quantity of the suspension flow out of the gap of the measuring element. This could be related to the breakdown of the structure.

The dynamic tests have shown the apparition of an elastic behavior for the concentrated suspension at the formation of the structure. When the amplitude of the deformation reached the critical deformation, the elastic modulus of the suspension increased drastically. For a slightly higher amplitude of deformation, the viscous modulus also increased but the magnitude of the increase was smaller. The presence of a non zero elastic modulus means that the structure reversibly stores energy. This energy is probably recovered when the structure is disassembled. This could explain the instability of the sample when there is too much energy stored in the structure.

The increase of the elastic modulus always occurred with a distortion in the shape of the deformation signal, from a perfect sinewave. This suggests that the flow of the

suspension is slowed down by the formation of the structure, causing a yield stress behavior.

In shear, the particles can execute two types of motion : rotation and translation, both in the direction of the flow. If the amplitude of the deformation is relatively small, the effects of the rotation dominate. When they rotate, the particles bring the surrounding fluid in their motion and when two particles are close enough, the two layers of fluid generated push the particles apart. When extended to the entire suspension, this phenomenon creates an isotropic suspension. However, if the amplitude of the deformations is high, the translation dominates and a structure of particles in the suspension is formed.

**TABLE DES MATIÈRES**

Dédicace .....	IV
Remerciements .....	V
Résumé .....	VI
Abstract.....	XI
Table des matières .....	XV
Liste des tableaux .....	XVIII
Liste des figures.....	XIX
Liste des symboles.....	XXV
Introduction .....	1
Problématique.....	1
Objectifs .....	2
Contenu.....	2
Chapitre 1 : Les suspensions concentrées.....	4
1.1 Introduction .....	4
1.2 Concepts théoriques et revue de la littérature.....	4
Chapitre 2 : Matériaux et méthode .....	15



2.1 Introduction .....	15
2.2 Les suspensions utilisées .....	15
2.3 Les rhéomètres utilisés .....	19
2.4 Description des essais rhéologiques effectués .....	20
2.5 Installation et conditionnement de l'échantillon .....	26
2.6 La rhéométrie des suspensions concentrées et ses difficultés.....	29
 Chapitre 3 : Essais en transitoire .....	 32
3.1 Introduction .....	32
3.2 Résultats des essais en fluage .....	32
3.3 Résultats des essais en démarrage .....	42
3.4 Discussion.....	50
 Chapitre 4 : Essais en dynamique .....	 65
4.1 Introduction .....	65
4.2 Résultats des essais réalisés avec les suspensions de billes de verre de type « sphericel » .....	65
4.3 Résultats des essais sur les autres suspensions .....	78
4.4 Discussion.....	85
 Conclusion .....	 95

Recommandations .....	97
Bibliographie .....	98
Annexe A.....	102
Annexe B .....	105

**LISTE DES TABLEAUX**

Tableau 1.1	Modèles rhéologiques pour les suspensions.....	7
Tableau 2.1	Propriétés des produits utilisés .....	18
Tableau 3.1	Indices de la loi de puissance des seconds paliers de viscosité selon la fraction volumique.....	39
Tableau 3.2	Déformation critique en fonction de la fraction volumique pour les suspensions de type « sphericel » .....	56
Tableau 4.1	Résultats des courbes de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte .....	72

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Regroupement de données rhéologiques sur les suspensions concentrées (tiré de Thomas (1965)) .....	8
Figure 2.1	Courbes typiques d'un essai en dynamique .....	24
Figure 2.2	Résultats typiques de conditionnement des suspensions à différentes fréquence d'oscillation .....	28
Figure 3.1	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,40$ , particules : sphericiel) .....	33
Figure 3.2	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,45$ , particules : sphericiel) .....	33
Figure 3.3	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel) .....	34
Figure 3.4	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel) .....	34
Figure 3.5	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,40$ , particules : sphericiel) .....	36
Figure 3.6	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,45$ , particules : sphericiel) .....	36

Figure 3.7	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel).....	37
Figure 3.8	Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel).....	37
Figure 3.9	Comparaison des courbes de viscosité selon la fraction volumique ( $\sigma = 20$ Pa, particules : sphericiel).....	38
Figure 3.10	Paliers de viscosité après induction de structure en fluage (particules : sphericiel) .....	41
Figure 3.11	Mise en évidence de la formation de structure lors du cisaillement : essais à contrainte positive/négative ( $\phi = 0,50$ , $\sigma = 10$ Pa, particules : sphériciel).....	41
Figure 3.12	Évolution de la structure de la suspension à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel).....	43
Figure 3.13	Évolution de la structure de la suspension à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel).....	44
Figure 3.14	Évolution de la structure en fonction de la déformation à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel) .....	44
Figure 3.15	Évolution de la structure en fonction de la déformation à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel) .....	45

Figure 3.16	Comparaison des seconds paliers de viscosité des essais en fluage et en démarrage après induction de structure (particules : spherichel).....	45
Figure 3.17	Évolution de la contrainte normale sous différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : spherichel).....	48
Figure 3.18	Évolution de la contrainte normale sous différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,55$ , particules : spherichel).....	48
Figure 3.19	Illustration des différents comportements des suspensions en fonction de la déformation ( $\phi = 0,50$ , $\dot{\gamma} = 0,4 \text{ s}^{-1}$ , particules : spherichel) .....	49
Figure 3.20	Évolution du palier de contrainte normale en fonction du taux de cisaillement (particules : spherichel) .....	49
Figure 3.21	Mouvement relatif des particules d'une suspension sous l'influence d'un cisaillement .....	52
Figure 3.22	Résultats d'essais en fluage réalisés avec différents entrefers ( $\phi = 0,50$ , $\sigma = 10 \text{ Pa}$ , particules : spherichel) .....	58
Figure 3.23	Disposition probable des particules dans la structure induite par cisaillement .....	61
Figure 3.24	Compaction maximale des suspensions lors de la formation de la structure (particules : spherichel) .....	61
Figure 4.1	Évolution des modules élastiques à différentes fréquences d'oscillation ( $\phi = 0,50$ , particules : spherichel) .....	67

Figure 4.2	Évolution des modules visqueux à différentes fréquences d'oscillation( $\phi = 0,50$ , particules : spherichel) .....	67
Figure 4.3	Variations de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte pour différentes fréquences d'oscillation ( $\phi = 0,50$ , particules : spherichel) .....	69
Figure 4.4	Évolution des modules élastique à différentes concentrations volumique ( $\omega = 0,628$ rad/s, particules : spherichel).....	70
Figure 4.5	Évolution des modules visqueux pour différentes concentrations volumiques ( $\omega = 0,628$ rad/s, particules : spherichel) .....	70
Figure 4.6	Variations de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte pour différentes concentrations volumiques ( $\omega = 0,628$ rad/s, particules : spherichel) .....	71
Figure 4.7	Évolution de l'angle de phase en fonction de l'amplitude de la déformation (particules : spherichel).....	73
Figure 4.8	Évolution de la forme des signaux de déformation ( $\omega = 6,28$ rad/s, $\phi = 0,50$ , particules : spherichel).....	74
Figure 4.9	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,50$ , particules : spherichel).....	76

Figure 4.10	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 3,14$ rad/s, $\phi = 0,50$ , particules : sphericel).....	76
Figure 4.11	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 6,28$ rad/s, $\phi = 0,50$ , particules : sphericel).....	77
Figure 4.12	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,45$ , particules : sphericel).....	77
Figure 4.13	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,40$ , particules : sphericel).....	78
Figure 4.14	Évolution des modules élastique et visqueux en fonction de l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve) .....	80
Figure 4.15	Variation de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve) .....	80
Figure 4.16	Évolution de la forme des signaux de déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve).....	81



Figure 4.17	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve) .....	81
Figure 4.18	Évolution des modules élastique et visqueux en fonction de l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,47$ , particules : polypropylène) .....	83
Figure 4. 19	Variation de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,47$ , particules : polypropylène) .....	83
Figure 4. 20	Évolution de la forme des signaux de déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,47$ , particule : polypropylène).....	84
Figure 4. 21	Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$ rad/s, $\phi = 0,47$ , particules : polypropylène) .....	84
Figure 4. 22	Démonstration de l'effet de la troisième harmonique sur les signaux de la déformation ( $\omega = 6,28$ rad/s, $\phi = 0,50$ , $\gamma^0 = 0,765$ , particules : sphericiel).....	89

**LISTE DES SYMBOLES**

$\phi$  : fraction volumique

$\phi_m$  : fraction volumique maximale

$\eta$  : viscosité

$\eta^+$  : viscosité en démarrage

$[\eta]$  : viscosité intrinsèque

$\eta_m$  : viscosité du fluide matrice

$\eta_s$  : viscosité de la suspension

$\eta_r$  : viscosité relative

$\eta^*$  : viscosité complexe

$\gamma$  : déformation

$\gamma_c$  : déformation critique

$\gamma^0$  : amplitude de la déformation

$\dot{\gamma}$  : taux de cisaillement

$\dot{\gamma}^0$  : amplitude du taux de cisaillement

$\dot{\gamma}_\infty$  : taux de cisaillement imposé en démarrage

$\rho$  : densité moyenne de la suspension

$\rho_p$  : densité des particules

$\rho_m$  : densité du fluide matrice

$\sigma$  : contrainte

$\sigma^0$  : amplitude de la contrainte

$\sigma_\infty$  : contrainte imposée en fluage

$\delta$  : angle de phase

$\theta$  : angle

$\psi$  : angle d'alignement de la structure

$\omega$  : fréquence

$a$  : rayon d'une particule

$A$  : amplitude

$d$  : distance centre à centre entre deux particules

$D$  : diamètre

$F_1, F_2, F_3$  : forces hydrodynamiques agissant sur les particules

$g$  : accélération gravitationnelle ( $9,81 \text{ m/s}^2$ )

$G'$  : module élastique

$G''$  : module visqueux

$h$  : entrefer

$H$  : différence de positions axiales entre deux particules

$L$  : longueur

$m$  : constante de la loi de puissance

$n$  : indice de la loi de puissance

$N_1$  : première différence des contraintes normales

$t$  : temps

$t_{\text{exp}}$  : durée d'un essai

$t_c$  : temps critique

$T$  : période d'oscillation

$U$  : vitesse moyenne du fluide

$v_t$  : vitesse terminale

$V_1$  : vitesse de la particule incidente (particule 1)

$V_2$  : vitesse de la particule 2

$x_c$  : déplacement critique

## **Introduction**

### **Problématique**

La rhéologie des suspensions concentrées est un domaine de recherche intense depuis plus d'un siècle et, malgré cela, renferme encore de nombreuses énigmes. La compréhension du comportement rhéologique des suspensions concentrées est d'une grande importance pour le milieu industriel. Beaucoup de produits de consommation courante sont des suspensions concentrées comme par exemple : la peinture, les cosmétiques et plusieurs produits alimentaires tels que le beurre d'arachide et le chocolat. Les suspensions concentrées sont aussi importantes dans des domaines plus technologiques, comme celui des mélanges de combustibles liquides et solides, et sont reliées à la résolution de problèmes environnementaux, par exemple, le transport et le traitement des boues. Pour tous ces produits, c'est le mélange de particules solides dans une matrice liquide qui provoque des phénomènes complexes et des propriétés d'écoulement parfois surprenantes.

Au cours des recherches sur le sujet, plusieurs comportements particuliers aux suspensions concentrées ont été mis en évidence par diverses expériences. Malgré plusieurs tentatives, ces phénomènes ne sont toujours pas expliqués de façon satisfaisante. La clé vers la compréhension de ces phénomènes passe par la compréhension du comportement des particules. Les particules se déplacent et

s'influencent les unes les autres dans une suspension, ce qui en fait un milieu complexe et difficile à caractériser. Le comportement des particules serait donc le facteur principal qui permettrait d'expliquer l'ensemble des phénomènes rhéologiques se produisant dans les suspensions et de les relier entre eux.

### **Objectifs**

Le premier objectif de ce travail est de définir et de caractériser le comportement rhéologique des suspensions concentrées par des essais expérimentaux sur des suspensions modèles dans des écoulements simples et bien définis. Le second objectif est d'établir le lien entre les phénomènes observés et la présence des particules afin d'essayer d'en comprendre les mécanismes. L'objectif final, à la suite de toutes les observations, est d'émettre des hypothèses sur le comportement des particules permettant d'expliquer l'ensemble des phénomènes rhéologiques se produisant dans les suspensions concentrées.

### **Contenu**

Ce mémoire est divisé en quatre chapitres. Le premier chapitre introduit quelques notions fondamentales et présente un résumé des principaux travaux, exécutés antérieurement à celui-ci, sur les suspensions concentrées. Le second chapitre porte sur

les matériaux et la méthodologie utilisés pour réaliser la partie expérimentale du projet. On y discute, entre autres, du choix des suspensions, des différents essais rhéologiques effectués ainsi que des difficultés inhérentes à la rhéométrie des suspensions concentrées. Les deux derniers chapitres présentent les résultats des essais rhéologiques et discutent de leurs significations. Ces chapitres contiennent plusieurs hypothèses expliquant le comportement rhéologique des suspensions concentrées observé à partir des résultats des essais.

## **Chapitre 1 : Les suspensions concentrées**

### **1.1 Introduction**

Ce premier chapitre introduit certaines notions de base sur les suspensions qui permettront, aux lecteurs non initiés à ce domaine, de mieux comprendre la suite de ce travail. Par la suite, nous présenterons une brève description des travaux exécutés antérieurement par les principaux chercheurs qui ont étudié les suspensions concentrées.

### **1.2 Concepts théoriques et revue de la littérature**

Une suspension concentrée est définie comme étant un mélange d'un fluide, possédant ses propres propriétés rhéologiques généralement complexes, et d'une quantité importante de particules solides, qui peuvent avoir différentes tailles, formes et propriétés. Ce sont les interactions entre le fluide et les particules et surtout, les interactions entre les particules elles-mêmes, qui font des suspensions des fluides complexes. Les interactions entre particules peuvent être classées en deux différentes catégories : les interactions hydrodynamiques et les interactions non hydrodynamiques.

Les interactions hydrodynamiques sont causées par le déplacement des particules induit par l'écoulement de la suspension lorsque soumise à un cisaillement. Cela peut provoquer des modifications dans la disposition des particules (modification de la



structure de la suspension), éloigner ou rapprocher les particules les unes des autres et provoquer des collisions entre particules. La taille et la forme des particules ont une influence importante sur les interactions hydrodynamiques. Dans cette catégorie, le mouvement diffusionnel brownien dû à des effets thermiques peut être ajouté.

Les interactions non hydrodynamiques sont des interactions agissant à de faibles distances interparticulaires comme les forces de van der Waals ou les forces électrostatiques, pour des particules possédant des charges électriques. Ces interactions peuvent être attractives, ayant tendance à former des agrégats de particules et même des réseaux de particules pouvant constituer un gel faible, ou répulsives, ayant tendance à distribuer uniformément les particules dans la suspension.

La concentration d'une suspension est quantifiée par la fraction volumique ( $\phi$ ) du mélange occupée par les particules. Généralement, une suspension est considérée comme concentrée à des fractions volumiques supérieures à 0,20. Cela dépend aussi de la fraction volumique maximale [ $\phi_m$ ] de particules dans la suspension, appelée aussi compaction maximale, qui est fonction de la géométrie des particules. La valeur de  $\phi_m$  peut varier de 0,18 pour des fibres de carbone ayant un facteur de forme  $L/D$  de 27 (Kitano 1981) jusqu'à 0,96 pour des particules élastiques pouvant se déformer (Mewis et al 1989). Pour des particules sphériques rigides, cette valeur est de 0,68 et correspond à une organisation cubique centrée.

Dès le début de la recherche sur les suspensions, il est clairement apparu que la viscosité augmentait exponentiellement avec la fraction volumique de la suspension.

Les pionniers du domaine ont tenté, avec plus ou moins de succès, d'élaborer des relations dérivées d'analyses théoriques ou de leurs expérimentations sur des suspensions de particules sphériques, reflétant cette situation. On peut citer (parmi plusieurs autres) les travaux théoriques de Einstein (1906 et 1911) pour des suspensions diluées, de Mooney (1951) et de Frankel et Acrivos (1967) qui semblent prédire correctement la viscosité des suspensions concentrées (cette relation fut démontrée erronée par Marrucci et Denn (1985)). Les relations fonctionnant le mieux sur l'ensemble des fractions volumiques, et qui sont à la fois les plus simples, sont celles de Maron et Pierce (1956) et de Krieger et Dougherty (1959) qui sont similaires. Toutes ces relations relient la viscosité relative ( $\eta_r$ ) de la suspension avec la fraction volumique de particules ( $\phi$ ). La viscosité relative est le rapport entre la viscosité de la suspension ( $\eta_s$ ) et la viscosité de la matrice ( $\eta_m$ ) (le fluide suspendant). Le tableau 1.1 présente les relations des auteurs ci-haut mentionnés.

**Tableau 1. 1 Modèles rhéologiques pour les suspensions**

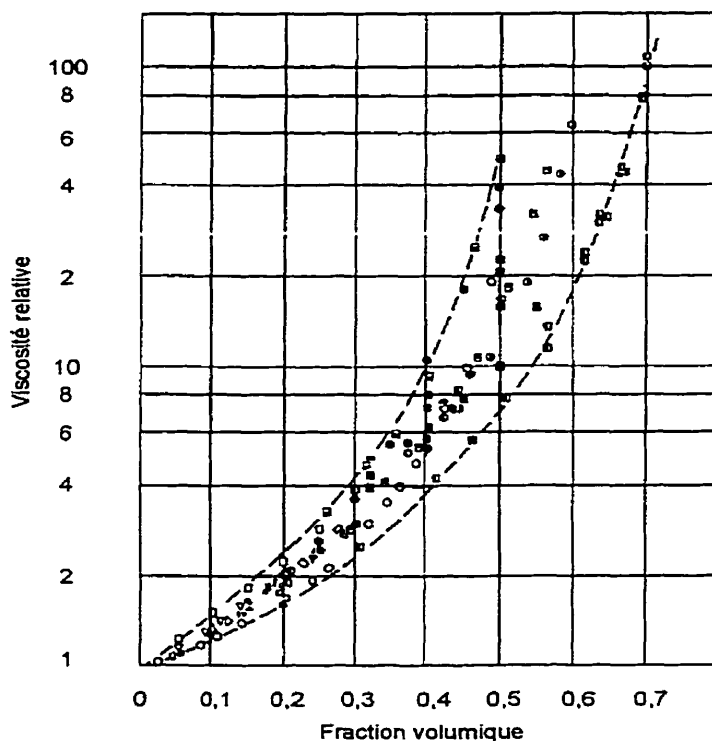
Einstein (1911)	$\eta_r = 1 + 2,5\phi$ (1. 1)
Mooney (1951)	$\log \eta_r = \frac{5}{2} \left( \frac{\phi}{1 - K\phi} \right)$ où $1,35 < K < 1,91$ (1. 2)
Frankel et Acrivos (1967)	$\eta_r = \frac{9}{8} \left( \frac{(\phi/\phi_m)^{1/3}}{1 - (\phi/\phi_m)^{1/3}} \right)$ (1. 3)
Maron et Pierce (1956)	$\eta_r = \left( 1 - \frac{\phi}{\phi_m} \right)^{-p}$ où $p = 2$ (1. 4)
Krieger et Dougherty (1959)	$\eta_r = \left( 1 - \frac{\phi}{\phi_m} \right)^{-[\eta] \phi_m}$ (1. 5)

Dans l'équation de Krieger et Dougherty,  $[\eta]$  représente la viscosité intrinsèque. Pour une suspension de particules sphériques sans interaction non hydrodynamique, sa valeur est environ 2,5. Autrement, elle peut être calculée avec la relation suivante :

$$[\eta] = \lim_{\phi \rightarrow 0} \frac{1}{\phi} \left( \frac{\mu_s - \mu}{\mu} \right) \quad (1.6)$$

En combinant les résultats expérimentaux des chercheurs de cette époque, il apparaît clairement qu'il y a beaucoup d'écarts entre les résultats de chacun. Ces écarts peuvent être expliqués par les faibles connaissances alors disponibles sur la présence des interactions non hydrodynamiques et surtout de la présence de phénomènes plus complexes qui seront discutés plus loin.

La figure 1.1 montre ces écarts dans les données recueillies par Thomas (1965) dans différentes publications antérieures, sur différents types de suspensions. Thomas en a déduit que la viscosité des suspensions n'est pas uniquement fonction de la fraction volumique, ce qui initia beaucoup de recherches dans le domaine des suspensions ayant des interactions non hydrodynamiques.



**Figure 1.1** Regroupement de données rhéologiques sur les suspensions concentrées (tiré de Thomas (1965))

Dans le présent projet, on se limite à l'étude des suspensions de particules sphériques rigides comportant uniquement des interactions hydrodynamiques dans un fluide newtonien. Le lecteur intéressé à en connaître plus sur le sujet des suspensions

contenant des interactions non hydrodynamiques, est invité à consulter la publication de Jeffrey et Acrivos (1976) qui font un excellent résumé des travaux de leurs précurseurs. Pour le lecteur intéressé par les effets de la géométrie des particules, on lui suggère la publication de Metzner (1985).

Les premiers à s'apercevoir de la présence de phénomènes assez particuliers avec des suspensions furent Gadala-Maria et Acrivos (1980). Bien que ne pouvant pas l'expliquer encore, ils observèrent que la viscosité de leurs suspensions (des sphères de polystyrène 40 à 50  $\mu\text{m}$  dans une huile silicone de même densité que le polystyrène), lorsque subissant un cisaillement dans une géométrie Couette, diminuait dans le temps jusqu'à une valeur asymptotique, reproductible d'un essai à l'autre. Cela se produisit seulement avec les suspensions ayant une fraction volumique de particules supérieure à 0,30. Ils observèrent aussi qu'à la suite d'un premier essai, en inversant la direction de l'écoulement dans un deuxième essai, la viscosité augmentait au début de l'essai pour ensuite diminuer comme dans le premier essai. Ils associèrent ce phénomène à la formation d'une structure de particules non isotrope dans la suspension, induite par cisaillement. Leighton et Acrivos (1987a) poursuivirent ces travaux et expliquèrent la diminution de la viscosité par la migration des particules hors de l'entrefer de la géométrie Couette vers le réservoir situé sous le cylindre intérieur. Selon eux, la migration des particules serait due à un phénomène de diffusion induite par le cisaillement, en présence d'un gradient de concentration de particules. Contrairement à Gadala-Maria et Acrivos, Leighton et Acrivos soutinrent que l'augmentation de la

viscosité à court terme (au début des essais) était plutôt due à un phénomène de migration de particules, mais dans ce cas là, de la paroi du cylindre intérieur de la géométrie Couette vers la paroi du cylindre extérieur. Dans un autre article, Leighton et Acrivos (1987b) affirmèrent que la diffusion des particules induite par le cisaillement serait fonction du produit du taux de cisaillement par le carré du rayon des particules. Par contre, le mécanisme par lequel la diffusion des particules induite par le cisaillement se produirait, ne fut pas clairement démontré, et si les expressions mathématiques qui y sont développées semblent prédire correctement leurs observations expérimentales, certains paramètres doivent être déterminés expérimentalement.

Par la suite, Phillips et al. (1992) proposèrent une équation constitutive pour décrire la migration des particules dans une suspension de particules monodisperses. Cette équation est formée par la combinaison d'une équation constitutive newtonienne dont la viscosité dépend de la fraction volumique (l'équation de Krieger et Dougherty, voir équation 1.4) et d'une équation de diffusion de particules inspirée du principe de diffusion induit par cisaillement introduit par Leighton et Acrivos (1987a). Le mécanisme de migration des particules de Phillips et al. est basé sur les collisions irréversibles entre deux particules, une collision irréversible étant une collision dans laquelle les particules dévient de leurs trajectoires initiales et se retrouvent à suivre une nouvelle trajectoire. La migration des particules serait provoquée par l'action combinée de deux types de flux de particules, l'un causé par le gradient de fraction volumique et l'autre, par un gradient de viscosité. Pour valider cette équation, ils utilisèrent la

résonance magnétique nucléaire pour suivre l'évolution de la concentration volumique de suspensions de particules de polyméthyle méthacrylate (diamètre des particules 100  $\mu\text{m}$  et 675  $\mu\text{m}$ ), dans une huile newtonienne, pour des écoulements dans des géométries Couette et dans des tubes. L'équation prédit correctement le comportement de ces suspensions, surtout pour les suspensions les plus concentrées, mais nécessite la détermination expérimentale de deux paramètres.

Une autre filière de la recherche sur les suspensions a étudié le phénomène de rhéoépaississement pour une vaste gamme de suspensions concentrées, avec et sans interactions non hydrodynamiques. Barnes (1989) résume les travaux présentés dans plus d'une centaine de publications. Selon ces travaux, les suspensions concentrées de particules solides présentent toujours un comportement rhéoépaississant réversible qui dépend de la concentration volumique, des propriétés de la matrice, de la taille et de la forme des particules. Par contre, le rhéoépaississement est réduit, voir même éliminé, lorsque les particules présentent la moindre tendance à adhérer les unes aux autres. Cela se produirait donc uniquement avec des particules neutres ou ayant tendance à se repousser. Le rhéoépaississement des suspensions concentrées serait dû à la transition d'un arrangement bidimensionnel de couches superposées de particules vers un arrangement tridimensionnel aléatoire de particules, cela se produisant à un taux de cisaillement caractéristique à chaque suspension. Si le phénomène de rhéoépaississement que nous observons dans ce projet est le même que celui dont il est sujet dans les publications citées par Barnes (ce qui n'est pas facile à déterminer parce

que ce n'est pas exactement le même type d'essais que nous avons réalisés), nous nous devons d'être en désaccord avec cette affirmation. Les chapitres 3 et 4 de ce mémoire expliquent notre position sur ce sujet.

Plus récemment, diverses techniques ont été utilisées pour étudier la micro-structure des suspensions sous cisaillement. Par exemple, Laun et al. (1992) ont utilisé la diffusion de neutrons pour prouver l'existence de la formation d'une structure non aléatoire dans les suspensions. Plusieurs auteurs ont aussi utilisé la résonance magnétique nucléaire pour étudier le déplacement relatif des particules à l'intérieur des suspensions en écoulement. Entre autres, Abbott et al. (1991), Chow et al. (1994) et Tetlow et al. (1998) utilisèrent cette technique pour étudier le phénomène de la migration des particules en géométrie Couette et plateaux parallèles. En géométrie Couette, Abbott et al. (1991) observèrent le phénomène de migration de particules décrit par Leighton et Acrivos (1987a), avec une suspension de polyméthyl méthacrylate (PMMA) dans une huile newtonienne. Par contre, aucune évidence de migration n'a été détectée dans la direction axiale. La migration des particules serait un phénomène irréversible et, dans des conditions de « creeping flow », ne dépendrait que du niveau total de déformation subi par l'échantillon. De plus, le taux de migration des particules ne dépendrait pas de la vitesse de déformation ni de la viscosité du fluide matrice, mais serait faiblement fonction de la dispersion de taille des particules. Chow et al. (1994) parvinrent aux mêmes conclusions que Abbott et al. (1991), avec des suspensions similaires, et confirmèrent le comportement en viscosité des suspensions observé par



Gadala-Maria et Acrivos (1980), c'est-à-dire augmentation au début de l'essai et diminution par la suite jusqu'à une valeur d'équilibre. Tetlow et al. (1998) démontrèrent que le modèle Phillips et al. (1992) n'était pas adéquat pour prédire le phénomène de la migration des particules dans les mêmes suspensions que celles utilisées par Chow et al. et Abbott et al. Ils ont aussi montré que la rugosité de la surface des particules a très peu, sinon aucun effet sur le phénomène. À notre connaissance, Chow et al. (1994) sont les seuls à avoir tenté d'observer le phénomène de la migration des particules en géométrie plateaux parallèles. Ils n'ont détecté aucune évidence de migration de particules dans cette géométrie, mais ils mentionnent avoir eu des problèmes à maintenir la suspension entre les plateaux. De plus, le rebord de leurs échantillons (la frontière avec l'air ambiant) avait tendance à se creuser vers l'intérieur des plateaux.

Pour l'écoulement dans des tubes, Hampton et al. (1997) ont aussi utilisé la résonance magnétique nucléaire pour étudier le comportement des particules. Les particules migrent rapidement vers le centre du tube, où le profil de vitesse d'écoulement devient plat. En comparaison avec les vitesses d'un fluide newtonien de même viscosité, les vitesses d'écoulement sont plus faibles avec une suspension, pour un même différentiel de pression appliqué.

Les travaux de cette maîtrise font suite à ceux de Lavoie (1995), qui a mis en évidence certains phénomènes particuliers aux suspensions concentrées. Il a observé, dans des suspensions de particules de polyvinyl chloré (PVC) et de particules d'oxyde de titane ( $\text{TiO}_2$ ) dans une matrice de polybutène, lors d'essais en dynamique, que les

modules élastique et visqueux augmentaient de façon très importante lorsque la suspension était soumise à des amplitudes de déformations élevées. Il a aussi observé ce qu'il croit être un seuil de contrainte d'écoulement induit par cisaillement chez ces suspensions. Il a associé ces phénomènes à la formation d'une structure par les particules à la suite d'un cisaillement.

## **Chapitre 2 : Matériaux et méthodes**

### **2.1 Introduction**

Ce chapitre décrit les procédures expérimentales ainsi que les produits utilisés pour fabriquer les suspensions. Les critères menant aux choix du fluide matrice et des particules des suspensions y sont expliqués. Les produits retenus sont présentés et leurs propriétés, détaillées. Par la suite, une brève description des rhéomètres utilisés sert d'introduction à l'explication des essais rhéologiques auxquels les suspensions ont été soumises. Ces explications sont mises à profit pour présenter quelques définitions rhéologiques nécessaires à la compréhension de ce travail. Dans une autre section, on décrit la façon dont les échantillons de suspensions sont installés, dans l'élément de mesure du rhéomètre, et conditionnés, pour éliminer les effets de cette installation. Le chapitre se termine par une discussion sur la rhéométrie des suspensions concentrées, où on explique certains problèmes et difficultés auxquels il faut faire face lors de la mesure des propriétés rhéologiques des suspensions.

### **2.2 Les suspensions utilisées**

Le choix des suspensions pour cette étude est guidé par différents critères. Il faut premièrement que les particules n'aient pas d'interactions entre elles, autres que des

interactions hydrodynamiques. De plus, la forme des particules pouvant influencer le comportement rhéologique de la suspension, on se limitera aux particules sphériques. La matrice doit être newtonienne, être assez visqueuse pour éviter le problème de lubrification aux parois mais pas trop pour ne pas cacher les phénomènes que nous désirons observer et ne doit pas être volatile. Les particules et la matrice doivent aussi avoir des densités comparables pour éviter qu'il y ait sédimentation dans la suspension. De cette façon, on se limite aux suspensions les plus simples (qui demeurent quand même très complexes!)

Le polybutène (Indopol H100 de la compagnie Stanchem) a été choisi pour constituer la matrice des suspensions. Ses propriétés ainsi que celles des particules utilisées peuvent être consultées au tableau 2.1. Son caractère newtonien et sa viscosité assez élevée en font un fluide intéressant. En étant newtonien, il est certain qu'il ne sera pas la cause de tout phénomène non linéaire pouvant se produire avec les suspensions. Sa viscosité élevée permet d'affranchir les expériences du glissement qui serait dû à la formation d'une couche de lubrification entre la paroi et les particules. Il a aussi l'avantage de ne pas être volatile à la température où les essais ont été effectués, soit 22,6 °C. De plus, il demeure à l'intérieur de la géométrie plateaux parallèles pour une gamme assez étendue de déformation. En fait, avec les appareils qui ont été utilisés pour le caractériser, il n'a pas été possible de le faire s'écouler hors des plateaux par cisaillement simple.

Trois types de particules ont été utilisés pour confectionner les suspensions. Les particules utilisées sont des billes de verres de type « sub-sieve » (E250P7 de la compagnie Potters Industries, des particules de polypropylène et des billes de verre de type « sphericel » (Sphericel 110 P8 de la compagnie Potters Industries). Pour les suspensions de particules de polypropylène et de billes de verre de type « sub-sieve », une concentration de 47 % en masse a été utilisée. Transformée en fraction volumique, cette concentration devient environ 47% pour les particules de polypropylène et 25% pour les billes de verre. Ces suspensions ont été obtenues en laissant décanter les particules dans le polybutène pendant quelques jours et, par la suite, en retirant le fluide excédentaire.

Les suspensions de billes de verre de type « sphericel » ont subi une analyse beaucoup plus poussée que les deux précédentes. Ces billes de verre sont vides à l'intérieur ce qui permet d'obtenir une densité beaucoup plus faible que celle de billes de verre ordinaires. Elles ont été utilisées à des concentrations de 40, 45, 50 et 55 % en volume dans le polybutène. Les suspensions ont été fabriquées en mesurant les masses nécessaires pour l'obtention de ces concentrations volumiques et mélangées à l'aide d'un agitateur spécialement conçu pour briser tout amas de particules.

Pour vérifier la présence d'un problème de sédimentation dans les suspensions durant le temps que dure un essai, la vitesse terminale d'une bille de verre de type « sphericel » a été évaluée à  $9,9 \times 10^{-4}$  mm/h avec la loi de Stokes :

$$v_t = \frac{2 a^2 (\rho_p - \rho_m) g}{9 \eta_m} \quad (1.1)$$

où  $a$  est le rayon de la particule,  $\rho_p$  la densité de la particule,  $\rho_m$  la densité du fluide matrice,  $g$  l'accélération gravitationnelle ( $9,8 \text{ m/s}^2$ ) et  $\eta_m$  la viscosité du fluide matrice.

Donc, le mouvement des particules dû à la gravité est très faible durant le temps que dure un essai et ne devrait pas influencer les résultats. De plus, le calcul de la vitesse de sédimentation par la loi de Stokes ne tient pas compte de l'encombrement causé par la forte concentration de particules qui devrait réduire la vitesse de sédimentation parce que les particules se gênent les unes les autres.

**Tableau 2.1 Propriétés des produits utilisés**

Produits	Viscosité	Densité	Masse moléculaire	Diamètre
Polybutène	25,4 Pa s à 22,5 °C	0,891 g/mL à 25 °C	920 g/mol	-
Polypropylène	-	0,89 à 0,92 g/mL	-	250 à 350 µm
« sub-sieve »	-	2,5 g/mL	-	10 µm
« sphericel »	-	≈ 1,1 g/mL	-	8 µm

### 2.3 Les rhéomètres utilisés

Pour tester les suspensions, trois rhéomètres de deux compagnies différentes ont été utilisés. Ces rhéomètres peuvent être classés en deux grandes catégories : les rhéomètres à contrainte imposée et les rhéomètres à déformation imposée. Dans le premier cas, le rhéomètre soumet l'échantillon analysé à un couple de torsion (converti mathématiquement sous forme de contrainte pour la commodité de l'analyse) et mesure la déformation de l'échantillon qui en résulte en fonction du temps. Les rhéomètres à déformation imposée fonctionnent de la manière opposée, c'est-à-dire qu'ils forcent l'échantillon à se déformer jusqu'à une valeur désirée, ou à une vitesse désirée, et mesure la contrainte retransmise par l'échantillon.

Sur les trois rhéomètres, deux proviennent de la compagnie Rheometric Scientific et l'autre de la compagnie Bohlin. Le rhéomètre CSM de Bohlin a été utilisé pour effectuer les essais en mode oscillatoire (voir section 2.4 pour des explications sur les essais) parce qu'il permet de récupérer les signaux sinusoïdaux de contrainte et de déformation, ce qui ne peut être fait de façon simple sur les deux autres. Par contre, il a le désavantage de ne pouvoir contrôler la température de l'échantillon lorsqu'il fonctionne à des températures avoisinant celle de la pièce, car il est principalement conçu pour travailler à hautes températures. Il a donc fallu contrôler la température de la pièce au complet pour travailler avec ce rhéomètre. Ce ne fut pas un problème avec les appareils de la compagnie Rheometric Scientific, car ils possèdent un bon contrôle en

température. Le SR-5000, rhéomètre à contrainte imposée, fut utilisé pour les essais en fluage et le rhéomètre à déformation imposée Ares fut utilisé pour les essais en démarrage (voir plus loin pour des explications sur les essais).

Dans le cas du rhéomètre à déformation imposée, le plateau du bas est mis en mouvement à la vitesse de déformation désirée et le couple mesuré est celui transmis par l'échantillon au plateau du haut. Pour ce qui est des rhéomètres à contrainte imposée, le plateau du bas est complètement immobile et la déformation mesurée correspond au déplacement du plateau du haut, le même plateau sur lequel le couple est appliqué.

Tous ces rhéomètres sont d'une grande précision. On estime que l'erreur de mesure est inférieure à 1 % des valeurs mesurées.

## **2.4 Description des essais rhéologiques effectués**

Dans ce travail, seule la géométrie plateaux parallèles fut utilisée, pour les raisons mentionnées au premier chapitre. Elle est constituée de deux disques installés parallèlement l'un au-dessus de l'autre avec un entrefer pouvant être ajusté selon la volonté de l'expérimentateur. Lors de tous les essais, quel que soit le rhéomètre utilisé, les disques ont un diamètre de 25 mm et l'entrefer entre les plateaux est de 2 mm. Quelques essais ont été réalisés avec des entrefers différents pour vérifier si cela pouvait avoir un effet sur les phénomènes que nous observons et pour s'assurer de l'absence de



glissement aux abords des plateaux. Ces essais seront commentés au chapitre 3. Tous les essais ont été réalisés à une température de  $22,6 \pm 0,1$  °C.

Les essais effectués dans ce projet peuvent être classés selon deux types : les essais en transitoire et les essais dynamiques. Les essais en transitoire sont le fluage et le démarrage, dont les résultats sont présentés au chapitre 3, et les essais dynamiques sont des essais oscillatoires, dont les résultats feront l'objet du chapitre 4.

Le fluage est un essai à contrainte imposée dont la contrainte est exprimée comme suit :

$$\sigma(t) = \sigma_{\infty} h(t) \quad (2.2)$$

où  $\sigma_{\infty}$  représente la contrainte imposée constante pour  $t > 0$  et  $h(t)$  est la fonction échelon, c'est-à-dire que  $h(t) = 0$  pour  $t < 0$  et  $h(t) = 1$  pour  $t > 0$ . Le rhéomètre mesure donc la déformation  $\gamma(t)$  que subit l'échantillon et calcule la viscosité de la façon suivante :

$$\eta(t, \sigma_{\infty}) = -\frac{\sigma_{\infty}}{\dot{\gamma}_{yx}(t)} \quad (2.3)$$

$$\dot{\gamma}_{yx}(t) = \frac{d\gamma_{yx}(t)}{dt} \quad (2.4)$$

L'essai en démarrage est la contrepartie du fluage pour le rhéomètre à déformation imposée. Dans cet essai, c'est la vitesse de cisaillement (ou taux de déformation) qui est imposée comme suit :

$$\dot{\gamma}(t) = \dot{\gamma}_{\infty} h(t) \quad (2.5)$$

où  $\dot{\gamma}_{\infty}$  représente la vitesse de cisaillement imposée constante pour  $t > 0$ . Dans ce cas-ci, le rhéomètre mesure la contrainte générée par l'échantillon et la viscosité est calculée de la façon suivante :

$$\eta^+(t, \dot{\gamma}_{\infty}) = -\frac{\sigma_{yx}(t)}{\dot{\gamma}_{\infty}} \quad (2.6)$$

Lors des essais en démarrage, le rhéomètre « Ares » permet aussi de mesurer la première différence des contraintes normales  $N_1$ . Cette fonction est reliée à la force exercée sur les plateaux par l'échantillon lorsque cisailé. Elle est définie de la façon suivante :

$$N_1(t, \dot{\gamma}_{\infty}) = -[\sigma_{xx}(t) - \sigma_{yy}(t)] \quad (2.7)$$

En supposant que la seconde différence des contraintes normales est négligeable devant la première différence de contrainte normale,  $N_1$  est définie comme suit pour une géométrie plateaux parallèles :

$$N_1 = \frac{2F}{\pi R^2} \left( 1 + \frac{1}{2} \frac{d \ln F}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right) \quad (2.8)$$

Pour mesurer  $N_1$ , le logiciel de calcul du rhéomètre utilise l'approximation suivante :

$$\frac{d \ln F}{d \ln \dot{\gamma}_R} \approx 1 \quad (2.9)$$

donc :

$$N_1 \approx \frac{3 F}{\pi R^2} \quad (2.10)$$

où  $F$  représente la force appliquée sur le plateau du haut et  $R$  le rayon d'un plateau.

Dans ce projet, les essais en dynamique ont été effectués uniquement à contrainte imposée. Le rhéomètre impose donc une contrainte oscillatoire définie par son amplitude et sa fréquence et mesure la réaction de l'échantillon en enregistrant sa déformation qui elle aussi se retrouve sous une forme oscillatoire. La contrainte imposée est de la forme suivante :

$$\sigma(t) = \sigma^0 \cos(\omega t) \quad (2.11)$$

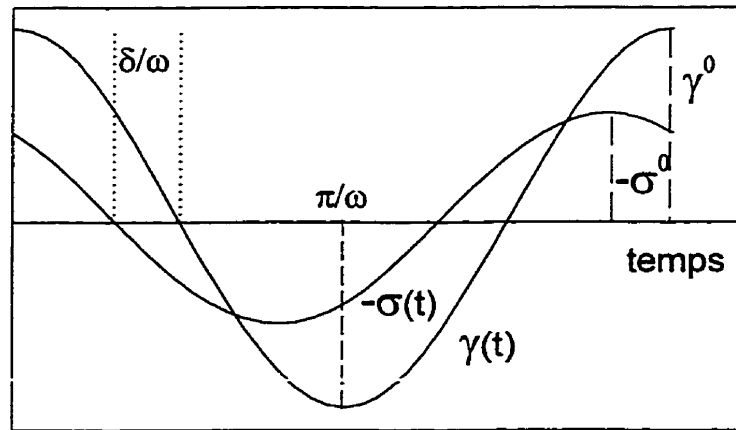
où  $\sigma^0$  représente l'amplitude de la contrainte et  $\omega$  sa fréquence. La contrainte peut être aussi présentée sous une forme complexe :

$$\sigma(t) = \text{Re} \left[ \sigma^0 e^{i\omega t} \right] \quad (2.12)$$

où le préfixe  $\text{Re}$  signifie la partie réelle de l'argument contenu entre les crochets.

La figure 2.1 montre un résultat typique d'essai en dynamique. Les courbes de la contrainte et de la déformation sont communément appelées « signaux » en référence au

domaine des communications où ce type de courbes sinusoïdales sont couramment utilisées. Le signe (positif ou négatif) des courbes indique la sens d'application de la contrainte ou de la déformation.



**Figure 2.1** Courbes typiques d'un essai en dynamique

Les signaux de la contrainte et de la déformation sont toujours déphasés d'un angle  $\delta$  qui dépend du niveau d'élasticité de l'échantillon. Un angle de déphasage de  $0^\circ$  correspond à un solide élastique tandis qu'un angle de  $90^\circ$  correspond à un fluide purement visqueux. La déformation s'exprime donc d'une des façons suivantes :

$$\gamma_{yx}(t) = \gamma^0 \cos(\omega t + \delta) \quad (2.13)$$

$$\gamma_{yx}(t) = \text{Re} \left[ \gamma^0 e^{i(\omega t + \delta)} \right] \quad (2.14)$$

De là, il est possible d'en obtenir le module élastique  $G'$ , associé à l'énergie emmagasinée réversiblement, le module visqueux  $G''$ , associé à l'énergie dissipée irréversiblement et le module complexe  $G^*$  :

$$G'(\omega) = -\frac{\sigma^0}{\gamma^0} \cos(\delta) \quad (2.15)$$

$$G''(\omega) = -\frac{\sigma^0}{\gamma^0} \sin(\delta) \quad (2.16)$$

$$G^* = \sqrt{G'^2 + G''^2} \quad (2.17)$$

La viscosité en mode dynamique, appelée viscosité complexe, est définie comme suit :

$$\eta^* = -\frac{\sigma^0}{\gamma^0} \quad (2.18)$$

La manière dont sont définies la contrainte et la déformation n'est pas exactement celle qu'on retrouve de façon classique dans la littérature; habituellement les essais en dynamique sont définis à déformation imposée.

Des balayages en contrainte en mode dynamique ont été effectués sur les suspensions, c'est-à-dire que les échantillons subissent un mouvement oscillatoire dont l'amplitude de la contrainte est augmentée graduellement. Une mesure de la déformation est donc prise pour chacune des contraintes, ce qui permet d'obtenir

l'évolution de la viscosité complexe et des modules selon la contrainte et la déformation (voir résultats du chapitre 4).

Tous les essais présentés dans ce projet, que ce soit en fluage, en démarrage ou en dynamique, ont été effectués à plusieurs reprises pour s'assurer de la reproductibilité des phénomènes observés. Tous les résultats rapportés dans ce mémoire ont été à l'intérieur de 5% de la valeur moyenne des essais. Les phénomènes qui seront décrits dans les chapitres 3 et 4, ne sont donc pas des artefacts et ils reflètent réellement le comportement des suspensions concentrées.

## **2.5 Installation et conditionnement de l'échantillon**

Avec les suspensions concentrées, la façon dont l'échantillon est installé entre les plateaux a des répercussions sur les résultats. Lors de l'installation de l'échantillon, il se produit inévitablement une déformation qui peut causer des phénomènes tel que l'induction de structure et, peut-être même, la migration des particules. Si de tels phénomènes se produisent, la suspension mesurée ne sera pas isotrope et les résultats des essais seront marqués par les effets de ces phénomènes qui ne sont pas désirés lors de l'installation.

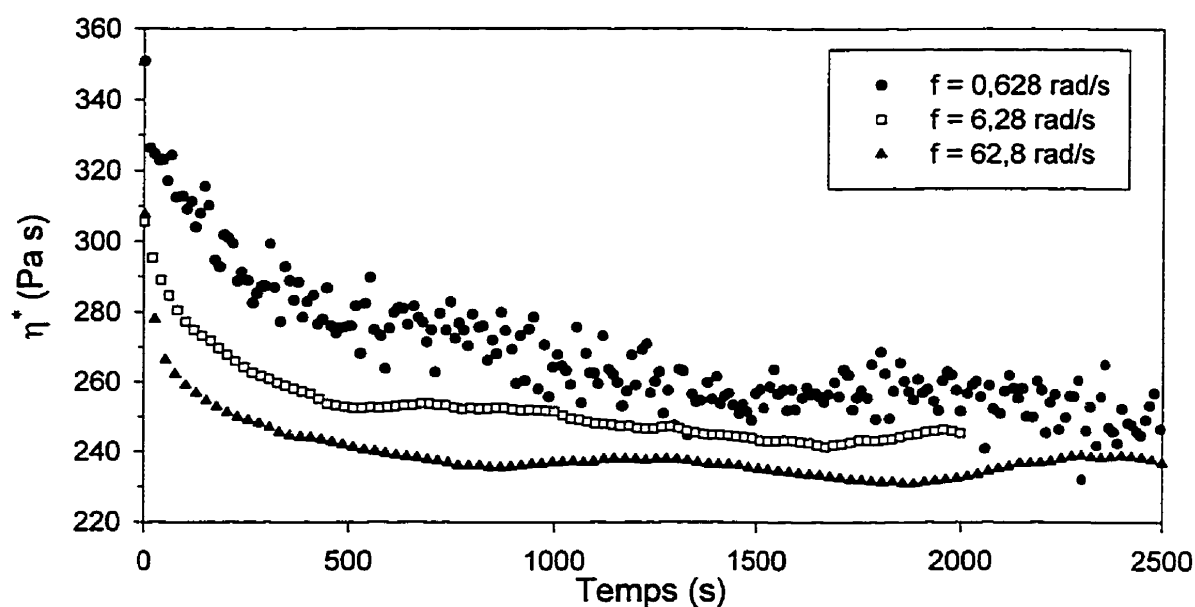
Pour installer un échantillon, une certaine quantité de la suspension est placée sur le plateau du bas à l'aide d'une petite spatule. Ensuite le plateau du haut est abaissé jusqu'à une distance supérieure de quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  (habituellement environ 70

$\mu\text{m}$ ) de l'entrefer désiré et l'excédent de fluide est retiré, laissant les rebords de la suspension bien alignés avec le côté des plateaux. Pour terminer, le plateau du haut est de nouveau abaissé, jusqu'à la valeur exacte de l'entrefer désiré, ce qui permet d'obtenir un petit bourrelet tout autour de la suspension. C'est ce qui est le mieux comme condition à la frontière de la suspension pour une géométrie plateaux parallèles.

Pour supprimer les effets de l'installation, tous les échantillons de suspensions subissent un conditionnement après leur installation sur les rhéomètres et avant d'effectuer un essai. Ce conditionnement consiste à imposer à l'échantillon un mouvement oscillatoire pendant 800 s à une fréquence de 6,28 rad/s (1 Hz). Durant le conditionnement, la déformation de l'échantillon (l'amplitude du mouvement oscillatoire) est maintenue entre 5 et 6%. Ce faible niveau de déformation permet d'éliminer les effets de l'installation en dispersant plus uniformément les particules de la suspension à cause d'effets hydrodynamiques qui seront expliqués au chapitre 4. La durée du conditionnement ainsi que la fréquence ont été choisies au tout début de l'expérimentation suite à quelques essais préliminaires. Il s'est avéré que ces conditions n'étaient pas optimales mais quand même suffisantes pour conditionner les suspensions de façon acceptable. La figure 2.2 montrent les résultats de conditionnement à diverses fréquences d'oscillation pour une suspension ayant une fraction volumique de particules de 0,50.

Sur cette figure, on remarque qu'au fil du conditionnement, la viscosité de la suspension diminue. Pour une fréquence d'oscillation de 62,8 rad/s (10 Hz), la viscosité

se stabilise entre 230 et 240 Pa.s, après environ 1000 s. Les deux autres conditionnements (pour les fréquences de 6,28 et 0,628 rad/s) nécessiteront plus de temps pour atteindre ce même niveau de viscosité. Donc, plus le conditionnement est exécuté à fréquence élevée, plus il est efficace. Cela démontre que le conditionnement de nos échantillons aurait pu être meilleur ou plus rapide en utilisant une plus haute fréquence, mais nous jugeons qu'il est suffisant et la bonne qualité. La bonne reproductibilité des résultats qui seront présentés dans les chapitres subséquents nous le confirme.



**Figure 2.2** Résultats typiques de conditionnement des suspensions à différentes fréquences d'oscillation. ( $\phi = 0,50$ ,  $\gamma^0 = 5\%$ , particules : spherical)



## 2.6 La rhéométrie des suspensions concentrées et ses difficultés

Les suspensions, de par leur nature, sont des mélanges hétérogènes contenant une phase de particules solides dispersées et une phase liquide, ce qui peut entraîner diverses complications dans la mesure de leurs propriétés rhéologiques.

Le premier critère à respecter lorsque l'on travaille avec des suspensions se rapporte aux dimensions des particules par rapport à celle de l'élément de mesure. Il faut que les particules soient beaucoup plus petites que l'entrefer de l'élément de mesure. Un facteur de 10 entre la dimension des particules et celle de l'entrefer est habituellement considéré comme raisonnable pour éviter les effets de parois qui peuvent survenir si ce critère n'est pas respecté. C'est la raison pourquoi la géométrie cône-plan n'est habituellement pas utilisée avec les suspensions : son entrefer étant très faible.

Le deuxième critère est relié aux effets gravitationnels et de flottaison. Lorsque les particules et la matrice possèdent des densités différentes, les particules auront tendance à sédimenter au fond ou à flotter au dessus de la suspension, en fonction du rapport des densités. Cela a pour effet de créer des zones dans la suspension de concentration plus élevée et d'autres de concentration plus faible. Pour ne pas fausser les résultats expérimentaux, ce phénomène doit se produire de façon beaucoup plus lente que tout autre phénomène observé.

De plus, les vitesses auxquelles sont soumises les suspensions ne doivent pas être trop élevées pour ne pas induire d'effets inertiels, pouvant créer des mouvements de

particules non désirés. Ces trois restrictions, pour la mesure des propriétés rhéologiques des suspensions, peuvent être quantifiées par les expressions suivantes (tirées de Carreau et al. 1998):

$$\frac{2a}{h} \ll 1 \quad (2.19)$$

pour le critère géométrique, où  $a$  est le rayon des particules et  $h$  l'entrefer,

$$\frac{t_{\text{exp}}}{h} \frac{(2a)^2 |\rho_p - \rho_m| g}{\eta_m} \ll 1 \quad (2.20)$$

pour le critère gravitationnel, où  $t_{\text{exp}}$  est la durée de l'expérience,  $\rho_p$  la densité des particules,  $\rho_m$  la densité de la matrice,  $g$  l'accélération gravitationnelle et  $\eta_m$  la viscosité de la matrice, et

$$\frac{2aU\rho}{\eta_s} \ll 1 \quad (2.21)$$

pour le critère inertiel, où  $U$  est la vitesse moyenne du fluide,  $\rho$  la densité moyenne de la suspension et  $\eta_s$  la viscosité de la suspension.

Certains phénomènes non désirés peuvent se produire lors de mesures rhéologiques réalisées avec des suspensions, dont il faut se méfier. Par exemple, il y a toujours une légère diminution de la concentration en particules près des parois d'un élément de mesure dû à l'empêchement stérique de la paroi. Si le fluide n'est pas assez visqueux pour entraîner les particules dans son déplacement, cela peut nuire au transfert de la quantité de mouvement de la paroi vers l'ensemble de la suspension. Il se crée une

mince couche lubrificatrice près de la paroi, ralentissant le transfert de quantité de mouvement ce qui occasionne un phénomène s'apparentant à du glissement à la paroi. Les particules se déplacent alors comme une seule masse et leur écoulement est plutôt du type piston. Un tel phénomène peut sérieusement perturber la prise de mesure rhéologique, surtout en présence d'induction de structure dans la suspension (voir chapitre 3).

Il faut aussi porter attention à la possibilité d'évaporation de la matrice, ce qui ferait augmenter la fraction volumique de particules. L'écoulement du fluide matrice hors de l'élément de mesure, qui peut se produire s'il n'est pas assez visqueux, et la présence de bulle d'air, qui se produit souvent lors de la préparation des suspensions, peuvent aussi fausser les mesures.

## **Chapitre 3 : Essais en transitoire**

### **3.1 Introduction**

Ce chapitre présente les résultats des essais en transitoire effectués sur les suspensions de billes de verre de type « sphericel ». Les suspensions ont été soumises à deux types d'essais en transitoire, soient les essais en fluage et les essais en démarrage. Rappelons que les essais en fluage sont à contrainte imposée tandis que les essais en démarrage sont à vitesse de déformation imposée. Ces essais ont permis de mettre en évidence le phénomène d'induction de structure dans les suspensions concentrées lorsque sous l'effet d'un cisaillement. Pour tenter d'expliquer ce phénomène, une théorie s'appuyant sur une nouvelle approche est élaborée dans la section discussion suivant la présentation des résultats.

### **3.2 Résultats des essais en fluage**

Lors de ces essais, un phénomène assez surprenant fut remarqué dès le début de l'expérimentation. Les figures 3.1 à 3.4 reproduisent les données expérimentales obtenues avec les suspensions de billes de verre de type « sphericel ». Chacune des figures présente les résultats obtenues à une concentration volumique différentes, soient 0,40, 0,45, 0,50 et 0,55, pour des essais effectués avec des contraintes de cisaillement allant de 1 à 100 Pa.

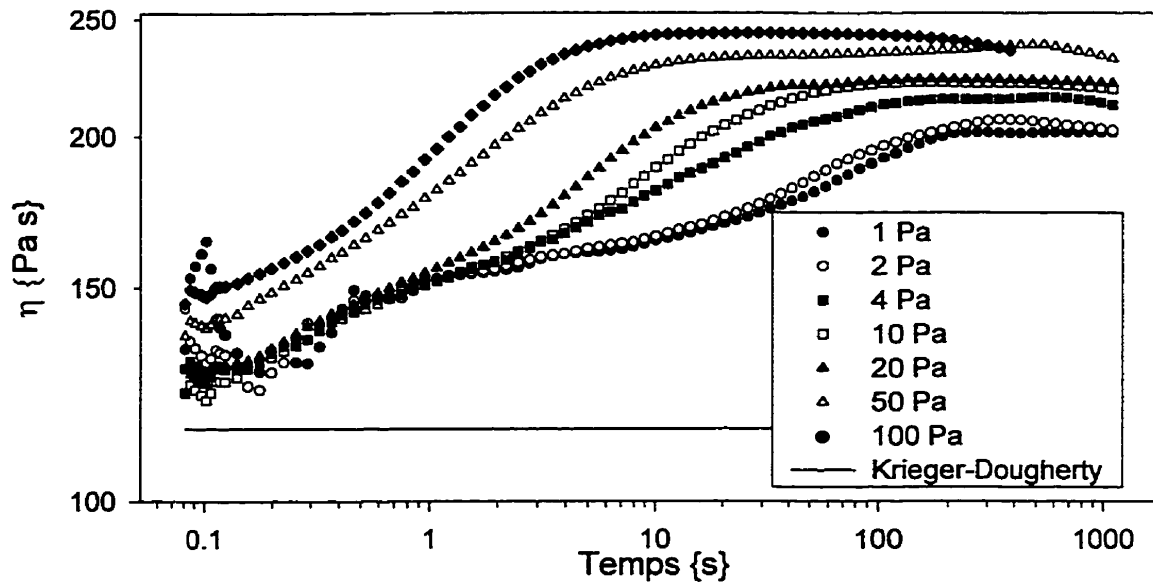


Figure 3. 1 Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,40$ , particules : sphericiel)

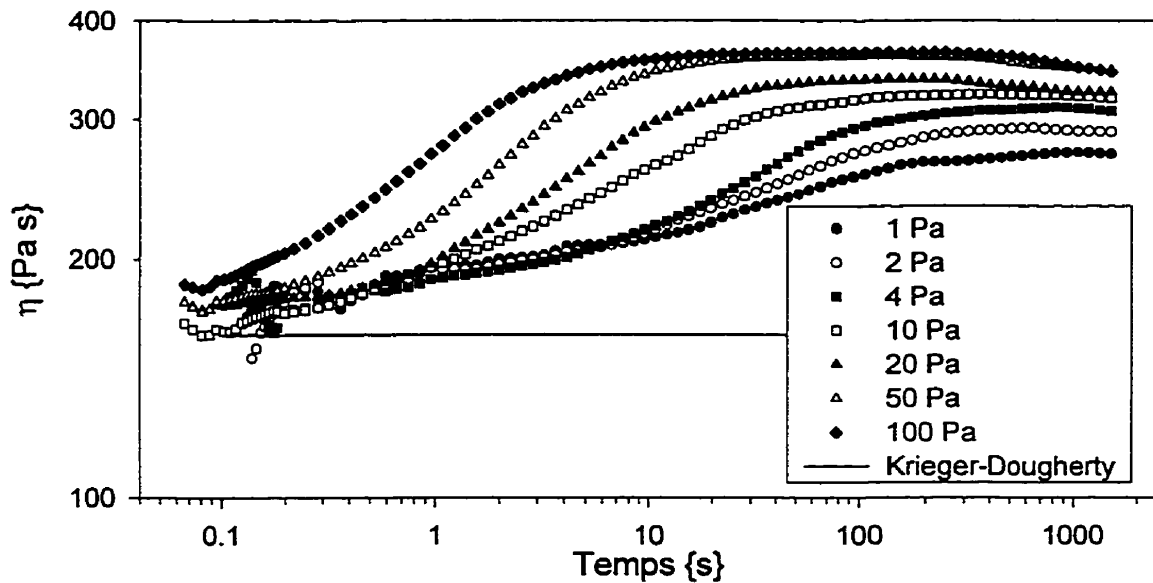


Figure 3. 2 Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,45$ , particules : sphericiel)

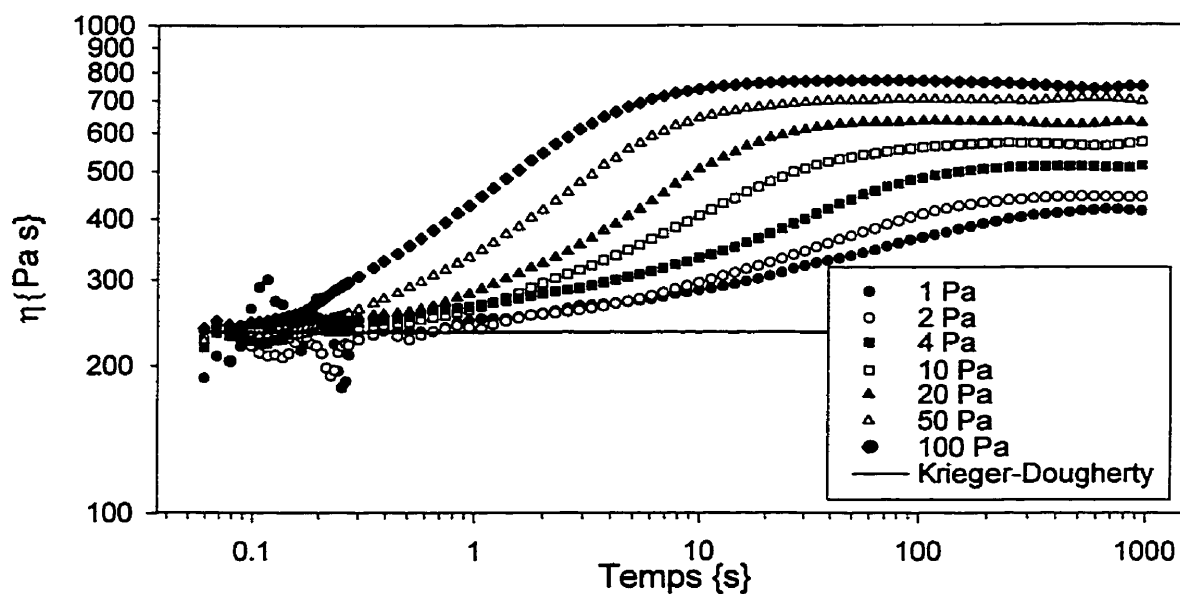


Figure 3.3 Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

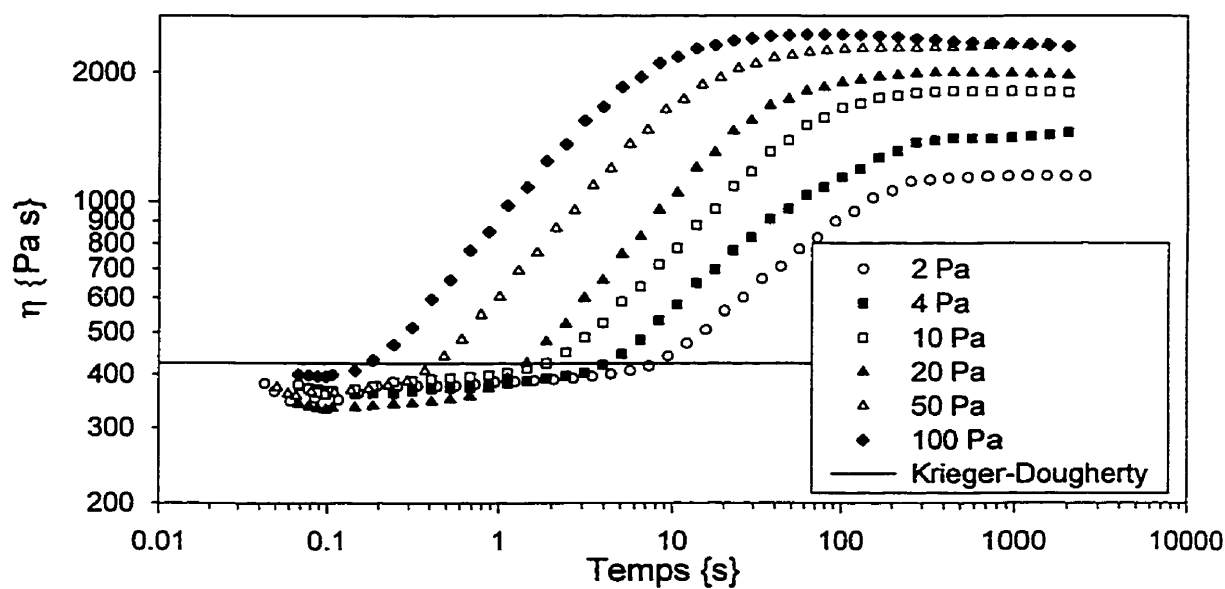
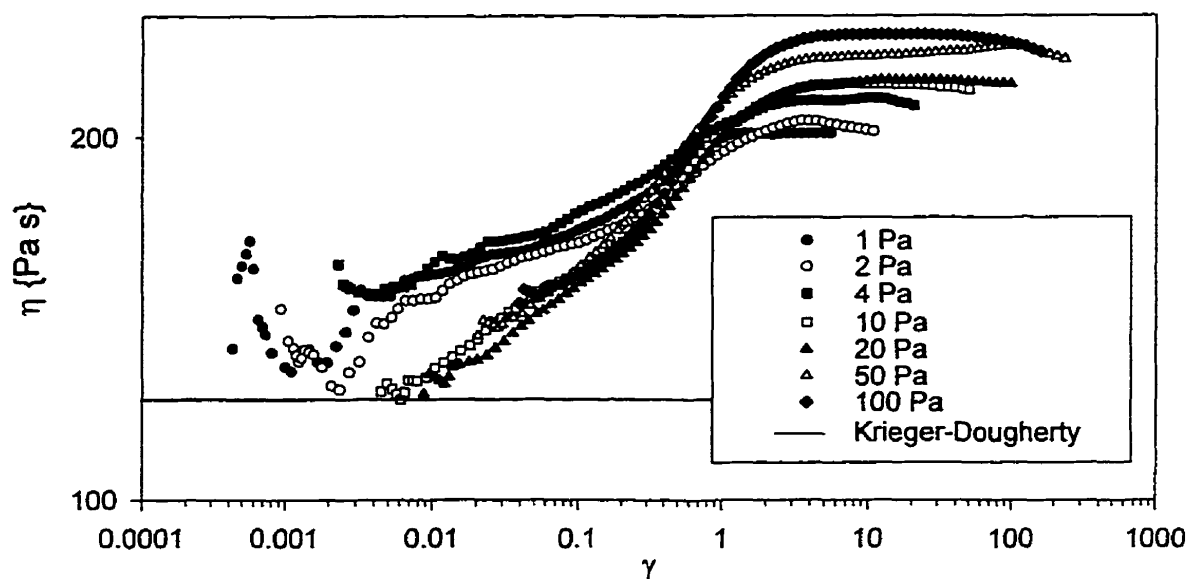


Figure 3.4 Évolution de la structure de la suspension en fonction de la contrainte de cisaillement imposée ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel)

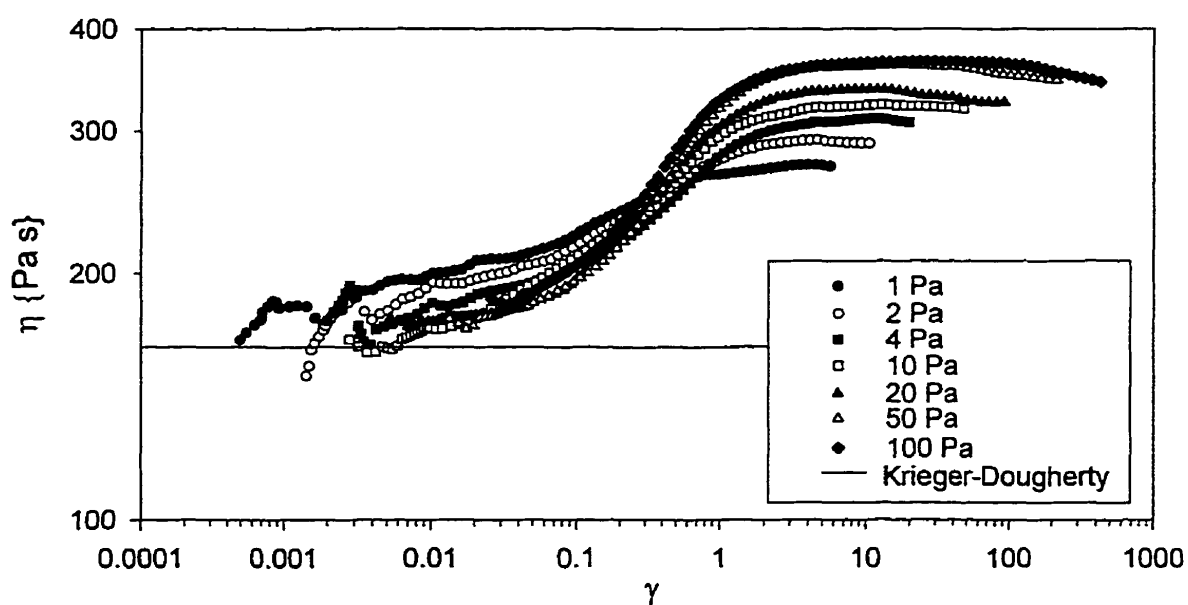
Au départ d'un essai, la viscosité des suspensions se stabilise à un premier palier. Pour une fraction volumique de 0,40, et même pour celle 0,45, il n'est pas évident de se convaincre de la présence de ce palier mais, plus la fraction volumique augmente plus ce palier est facile à voir. En effectuant ces essais avec la même suspension mais en appliquant une contrainte différente d'un essai à l'autre, ce palier est environ toujours au même niveau de viscosité. On observe quand même un certain écart entre les valeurs de viscosité de ces paliers mesurées à des contraintes différentes. Ces écarts peuvent être attribués au fait que les suspensions n'étaient pas toujours complètement isotropes au début de chaque essai, parce que le conditionnement n'était pas toujours suffisant. Les suspensions n'étant pas toujours exactement dans le même état au début d'un essai, il est donc normal qu'elles aient un peu d'écart entre leurs valeurs de viscosité.

Sur chacune des figures, on a tracé une droite correspondant à la viscosité prédite par l'équation de Krieger et Dougherty ( $\phi_m = 0,68$  et  $[\eta] = 2,5$ ). Cette droite sert de point de comparaison entre les résultats obtenus dans ce travail et les modèles classiques de viscosité des suspensions concentrées. On remarque que le premier palier est prédit de façon acceptable par cette équation pour les concentrations volumiques étudiées, compte tenu de l'imprécision des paramètres théoriques  $\phi_m$  et  $[\eta]$  qui peuvent être affectés par la distribution des diamètres et de la sphéricité non parfaite des billes de verre.

À la suite de ce premier palier, la viscosité augmente assez rapidement vers un



**Figure 3. 5** Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,40$ , particules : sphericiel)



**Figure 3. 6** Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,45$ , particules : sphericiel)



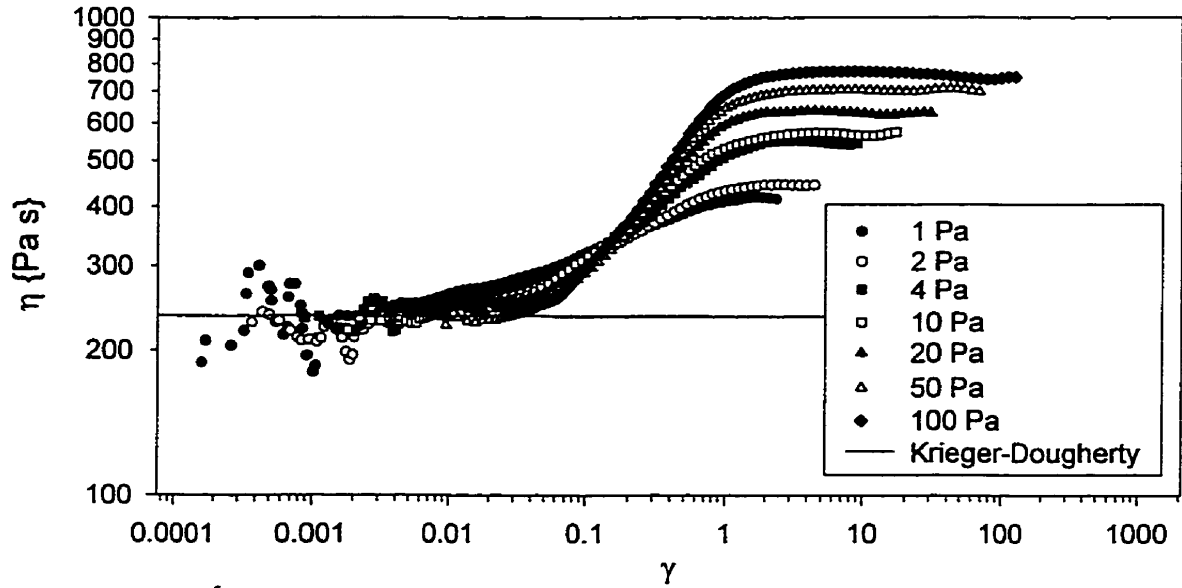


Figure 3. 7 Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

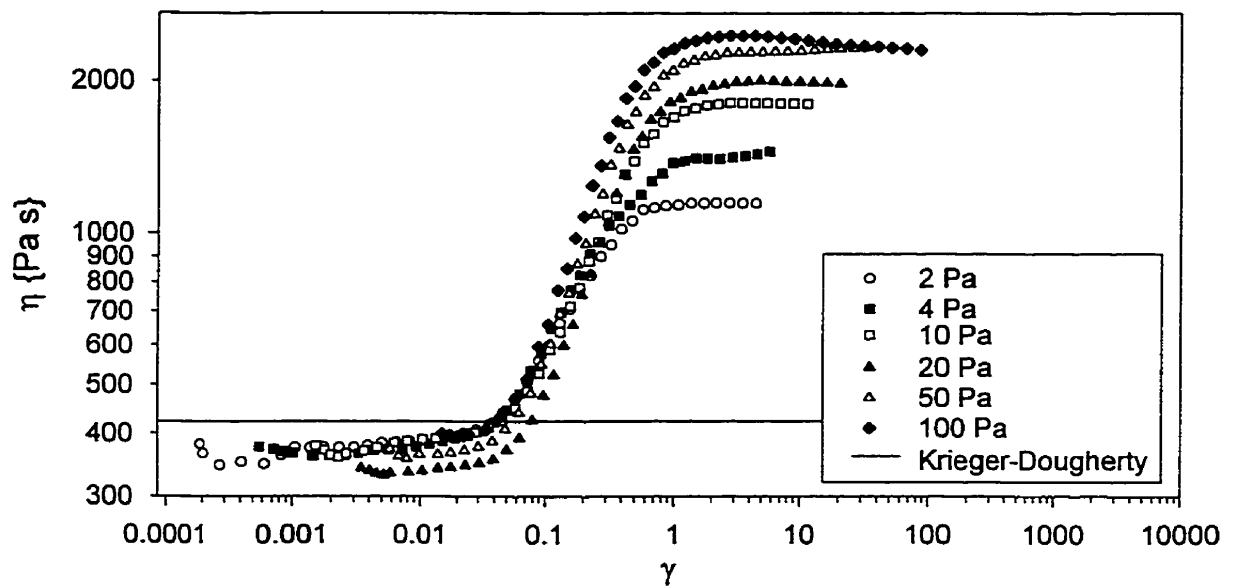
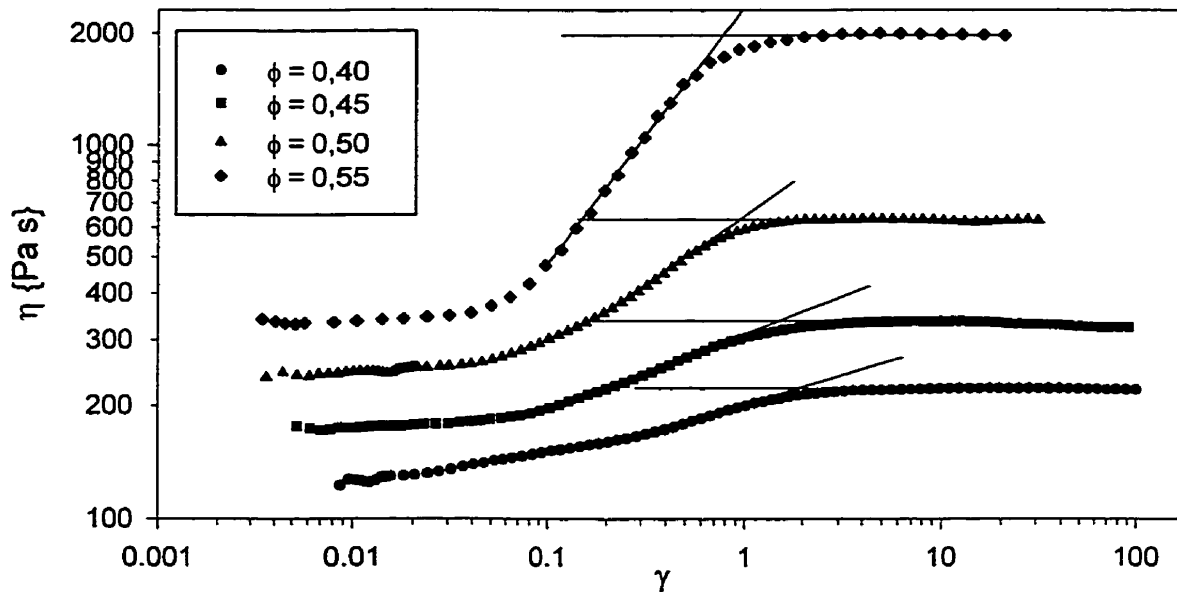


Figure 3. 8 Évolution de la structure de la suspension en fonction de la déformation ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel)

second palier de valeur beaucoup supérieure au précédent. Cette augmentation est de l'ordre de 100% par rapport à la valeur du premier palier et, elle est de plus en plus considérable à plus haute fraction volumique. La valeur de ce second palier augmente avec la valeur de la contrainte de cisaillement appliquée. De plus, le second palier est atteint plus rapidement à contraintes de cisaillement plus élevées.

Les résultats de viscosité des essais en fluage sont présentés aux figures 3.5 à 3.8 en fonction de la déformation subie par l'échantillon, pour chacune des concentrations volumiques. On peut voir sur ces figures que le phénomène de l'augmentation de la viscosité est directement relié à la déformation de la suspension. Pour une même fraction volumique, l'augmentation de la viscosité ainsi que l'atteinte du second palier



**Figure 3. 9** Comparaison des courbes de viscosité selon la fraction volumique ( $\sigma = 20$  Pa, particules : spherical)

se produisent environ aux mêmes déformations pour toutes les contraintes. Selon la fraction volumique, pour la même contrainte appliquée, l'augmentation de la viscosité est plus prononcée en fonction de la déformation et le deuxième palier est atteint à une déformation plus faible, lorsque la concentration volumique est plus élevée (figure 3.9).

Toutes les valeurs de viscosité des seconds paliers des figures 3.1 à 3.4 sont reportées à la figure 3.10 en fonction du taux de cisaillement correspondant. On remarque immédiatement qu'il y a une relation de type loi de puissance (linéaire sur un graphique log-log) entre la viscosité au second palier et le taux de cisaillement, pour une même concentration volumique de particules. Les droites reliant les données de chaque concentration volumique ont été obtenues par régression linéaire et le tableau 3.1 présente les indices de la loi puissance correspondant à chacune des concentrations volumiques. L'équation 3.1 présente l'expression mathématique de la loi de puissance.

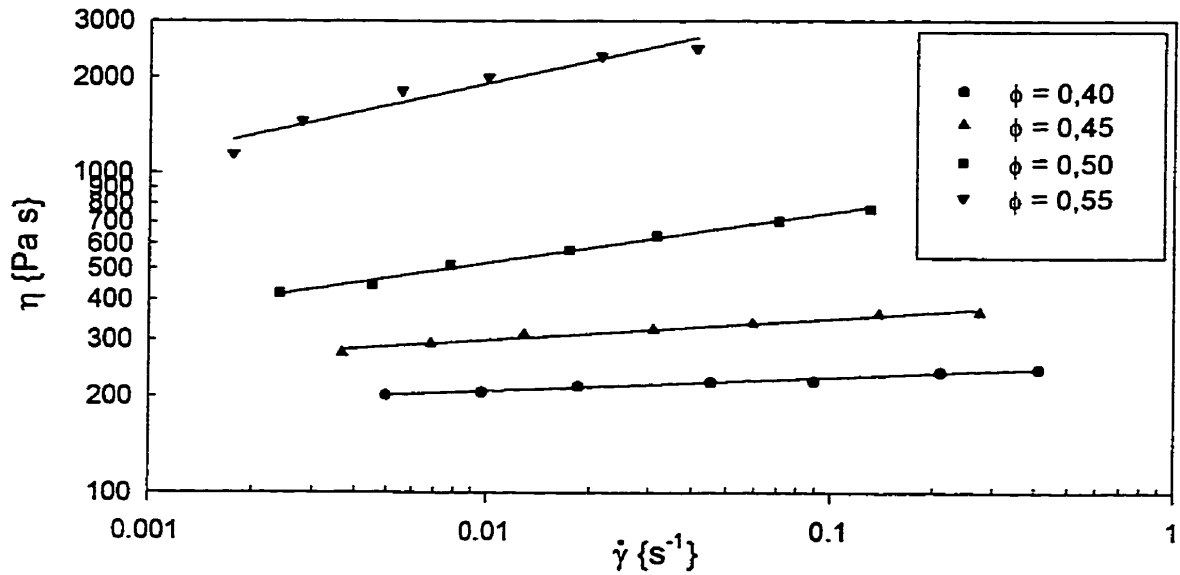
$$\eta = m|\dot{\gamma}|^{n-1} \quad (3.1)$$

**Tableau 3.1 Indices de la loi de puissance des seconds paliers de viscosité selon la fraction volumique**

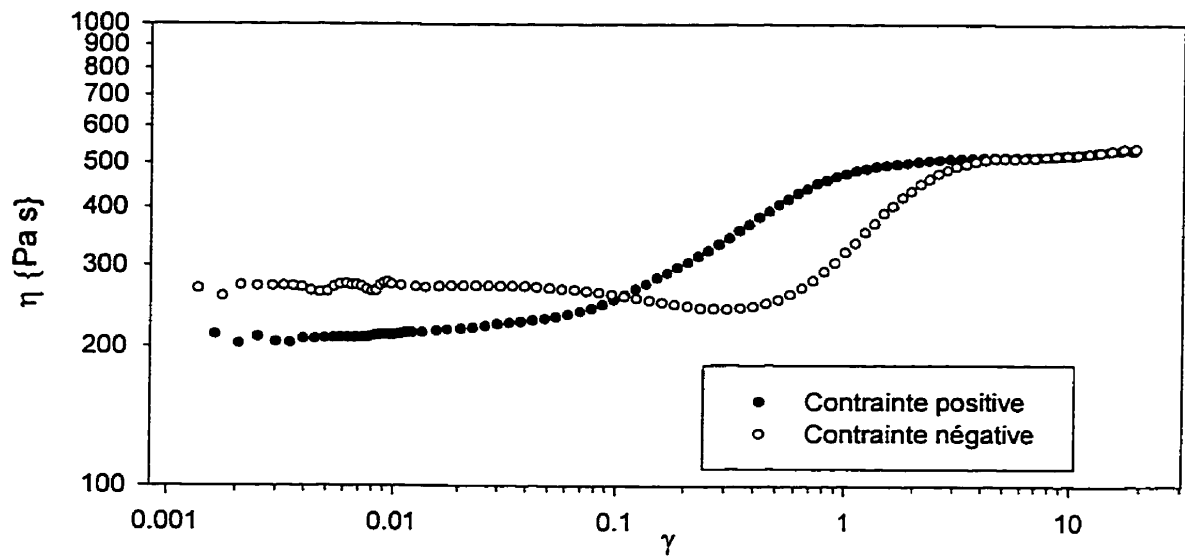
Fraction volumique	n
0,40	1,042
0,45	1,066
0,50	1,155
0,55	1,212

La figure 3.11 présente le résultat d'une expérience un peu particulière. Pour réaliser cette expérience, on a tout simplement exécuté un essai, comme ceux présentés aux figures 3.1 à 3.4, puis stoppé le rhéomètre, c'est-à-dire qu'aucune contrainte n'est appliquée sur l'échantillon, après l'obtention du second palier. Ensuite, sur le même échantillon, une contrainte de cisaillement identique à celle imposée précédemment, mais de signe négatif a été appliquée. Il est important de mentionner que l'échantillon ne subit aucune perturbation durant la courte période de temps (moins de cinq secondes) entre les deux contraintes. Pour l'essai à contrainte négative, on remarque qu'initialement le premier palier est plus élevé que celui de l'essai qui le précède. Ensuite, sa viscosité diminue, tend vers la valeur du premier palier de l'essai à contrainte positive puis, remonte pour rejoindre exactement le même valeur de second palier. Ces résultats s'avèrent très révélateurs du comportement des suspensions et de leur structure.

Un autre phénomène intéressant se produit lorsque le second palier est atteint depuis un certain temps : l'échantillon entre les plateaux se creuse dans le haut et une légère partie du fluide s'écoule hors des plateaux. Ce phénomène est vraisemblablement dû à la présence des particules de la suspension car il a été impossible de le reproduire avec le fluide matrice seul.



**Figure 3. 10 Paliers de viscosité après induction de structure en fluage (particules : sphérical)**



**Figure 3. 11 Mise en évidence de la formation de structure lors du cisaillement : essais à contrainte positive/négative ( $\phi = 0,50$ ,  $\sigma = 10$  Pa, particules : sphérical)**

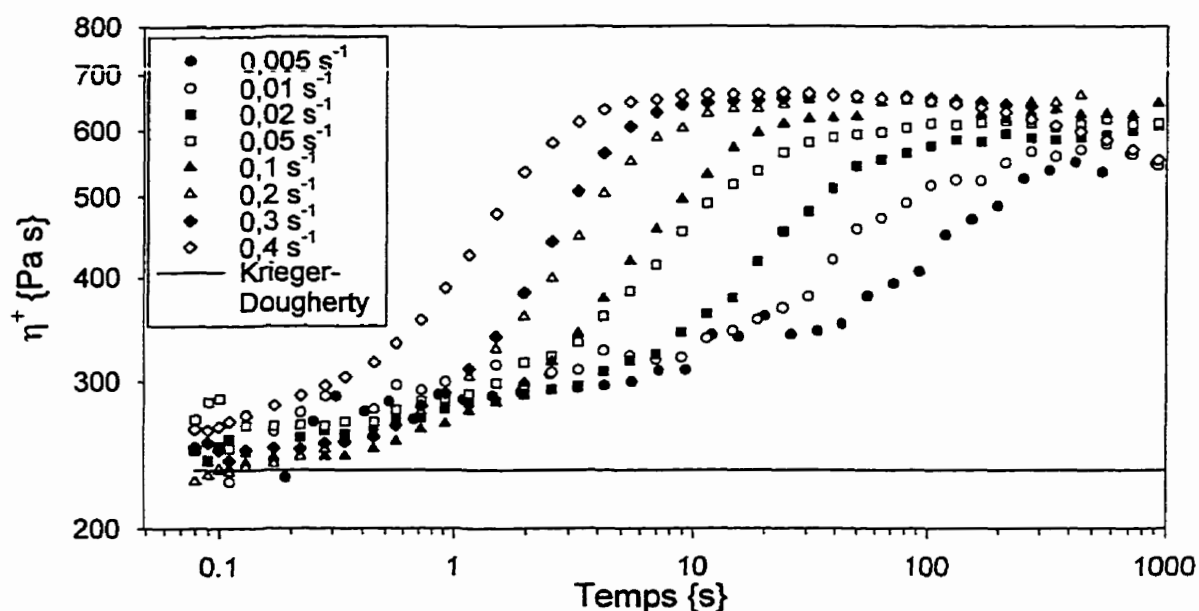
### 3.3 Résultats des essais en démarrage

Le but des essais en démarrage était de valider les essais en fluage sur un autre rhéomètre (l'Ares, rhéomètre à vitesse de déformation imposée) et par le fait même d'obtenir des données sur la présence de contraintes normales avec les suspensions, présence qui était fortement suspectée. Ces essais ont permis de s'assurer de la justesse des mesures en fluage et soulèvent quelques questions.

Les essais en démarrage n'ont été effectués que sur les deux concentrations les plus élevées ( $\phi = 0,50$  et  $0,55$ ), avec bien entendu, les mêmes suspensions que lors des essais en fluage. Les résultats sont présentés aux figures 3.12 et 3.13. En reportant ces données de viscosité en fonction de la déformation plutôt que du temps, on obtient des courbes pratiquement superposées, présentées aux figures 3.14 et 3.15. Cela nous porte à croire que le comportement rhéologique des suspensions est gouverné principalement par la déformation qu'elles subissent.

Comme dans le cas des essais en fluage, la présence des deux paliers de viscosité est observée. La grande surprise vient du second palier : sa valeur est pratiquement la même pour toutes les vitesses de cisaillement alors qu'en fluage sa valeur augmente avec la contrainte imposée. La valeur unique du second palier qui est obtenu en démarrage correspond quand même à la valeur moyenne des seconds paliers de viscosité obtenus en fluage (pour des concentrations identiques). Pour une concentration volumique de 50%, la viscosité du second palier en démarrage est d'environ 600 Pa.s, tandis qu'en fluage, le second palier varie entre 400 et 700 Pa.s selon la contrainte de

cisaillement appliquée. La même chose se produit à une concentration volumique de 55%. En démarrage, le second palier de viscosité est environ à 2200 Pa.s, tandis qu'en fluage il prend des valeurs entre 1100 et 2500 Pa.s. Les seconds paliers en fluage et en démarrage sont comparés à la figure 3.16, en fonction de la vitesse de cisaillement. Essentiellement, en combinant les résultats en fluage et en démarrage, on peut en tirer la conclusion que la viscosité du second palier dépend de la vitesse de cisaillement à faible vitesse, pour atteindre une valeur constante à haute vitesse.



**Figure 3. 12 Évolution de la structure de la suspension à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)**

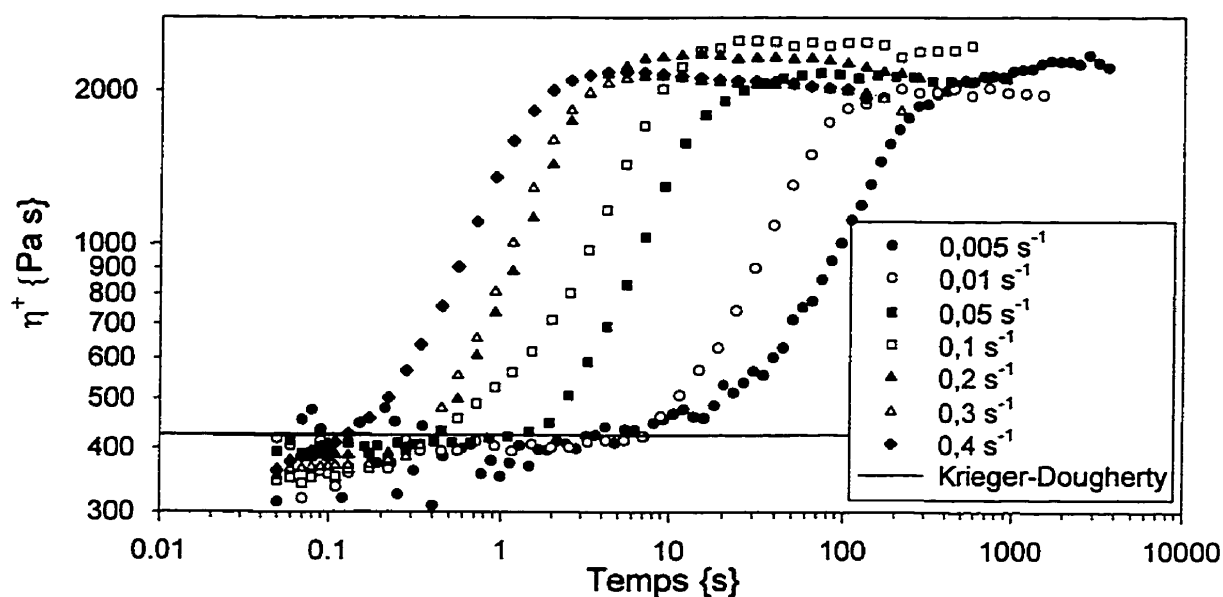


Figure 3. 13 Évolution de la structure de la suspension à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

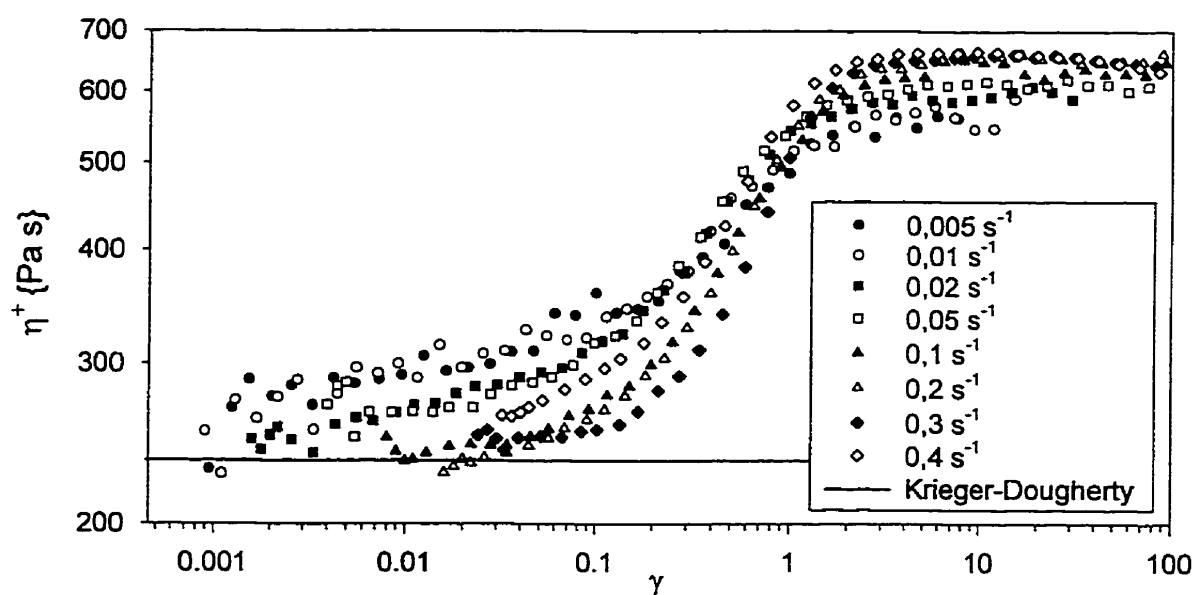


Figure 3. 14 Évolution de la structure en fonction de la déformation à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)



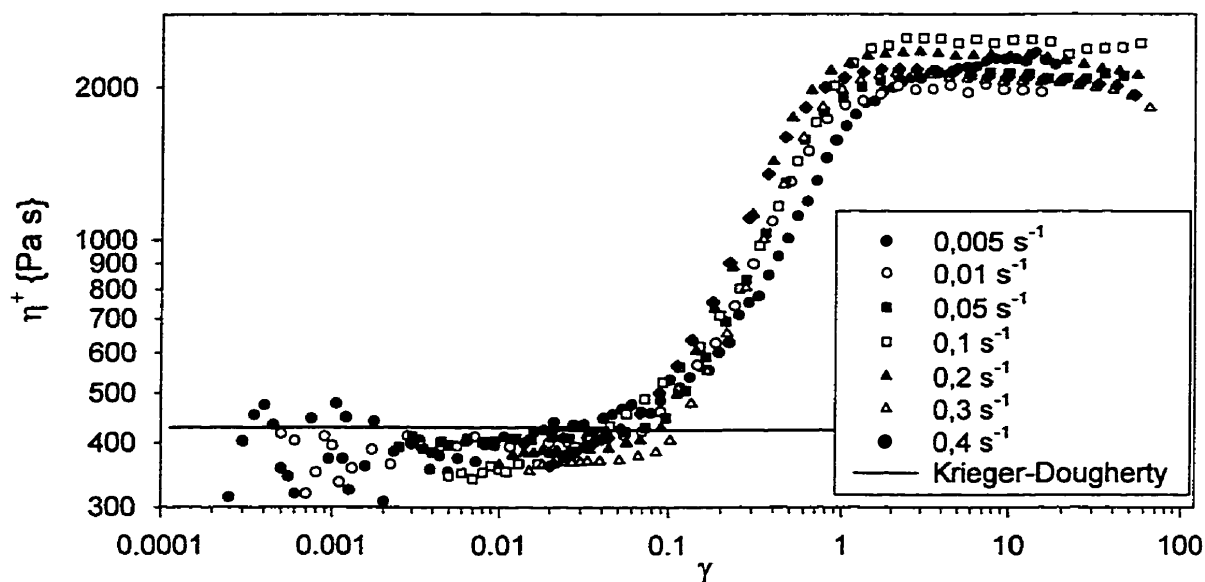


Figure 3. 15 Évolution de la structure en fonction de la déformation à différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel)

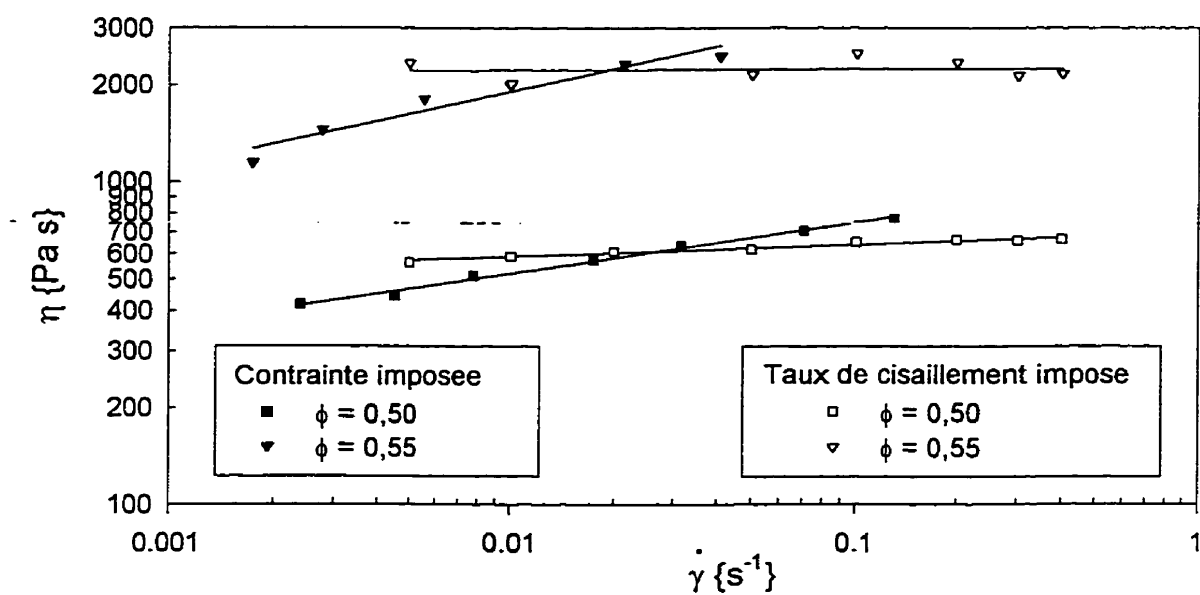
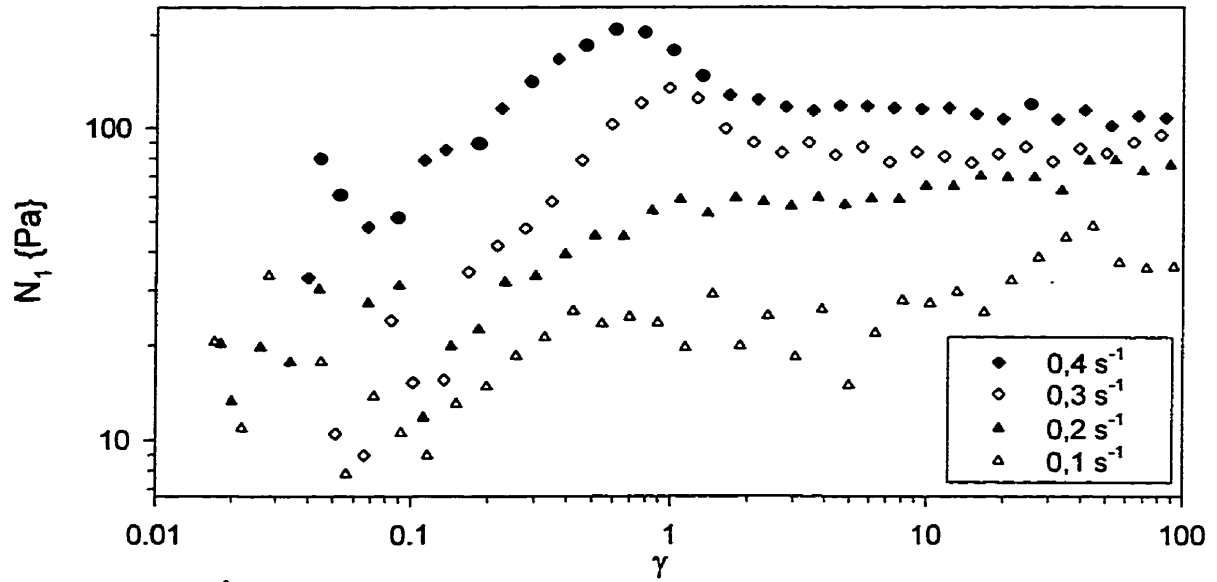


Figure 3. 16 Comparaison des seconds paliers de viscosité des essais en fluage et en démarrage après induction de structure (particules : sphericiel)

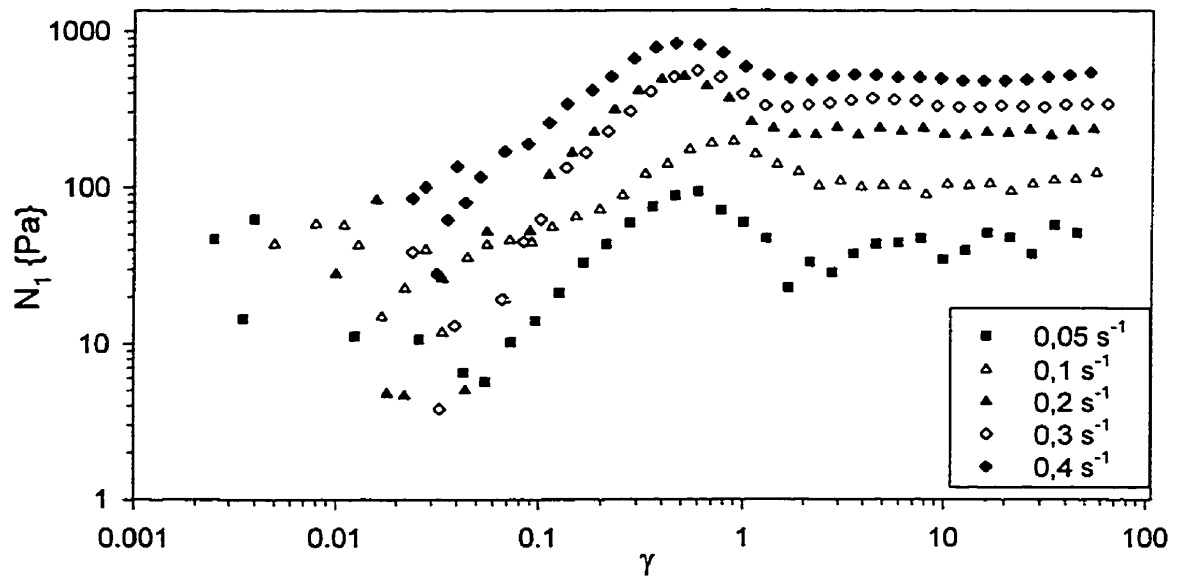
Pour ce qui est des forces normales, les suspensions présentent un comportement qui est en relation avec celui de la viscosité. Les figures 3.17 et 3.18 présentent les résultats des contraintes normales primaires des essais en démarrage, pour les deux différentes concentrations volumiques, en fonction de la déformation, tandis que la figure 3.19 montre la correspondance entre la contrainte normale et la viscosité des suspensions. On observe un accroissement de la première différence des contraintes normales pendant l'accroissement de la viscosité vers le second palier. On observe également l'atteinte d'un palier de contrainte normale en même temps que le second palier de viscosité. De plus, pour les vitesses de cisaillement les plus élevées, on remarque la présence d'un maximum sous la forme d'un pic (dépassement), juste avant la formation du second palier de viscosité. Le niveau des contraintes normales est assez important. À une concentration volumique de 0,50, la contrainte normale atteint une valeur maximale de 200 Pa et se stabilise à environ 100 Pa, pour une vitesse de cisaillement de  $0,4 \text{ s}^{-1}$ . Elle est d'ailleurs fortement dépendante de la concentration volumique, parce que à une fraction volumique de 0,55, pour une même vitesse de cisaillement, elle atteint une valeur maximale d'environ 800 Pa et se stabilise autour de 500 Pa.

Sur la figure 3.19, on montre l'effet du creusement de l'échantillon qui s'accompagne toujours d'un léger écoulement de la suspension hors des plateaux ; phénomène qui a aussi été observé lors des essais en démarrage. Il correspond toujours avec une diminution de la viscosité qui apparaît après le second palier. Curieusement, il ne semble pas affecter le palier de contrainte normale.

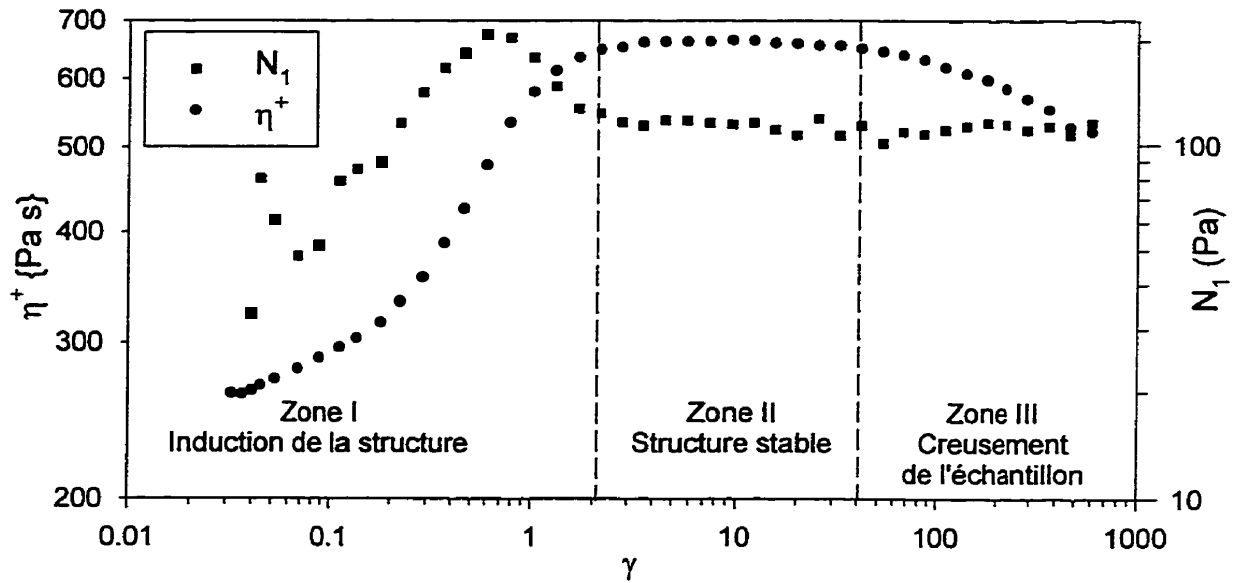
La figure 3.20 montre la variation du palier des contraintes normales en fonction du taux de cisaillement. Pour les deux fractions volumiques, la valeur du palier de contrainte normale varie de façon linéaire en fonction du taux de cisaillement. Par contre, la pente de la droite ainsi formée est plus élevée à une fraction volumique de 0,55 que celle à 0,50 (1300 à  $\phi = 0,55$  et 272 à  $\phi = 0,50$ ). En calculant les indices de loi de puissance pour chacune des courbes, on trouve une valeur de 1,91 pour la fraction volumique de 0,50 et 2,18 pour la fraction volumique de 0,55.



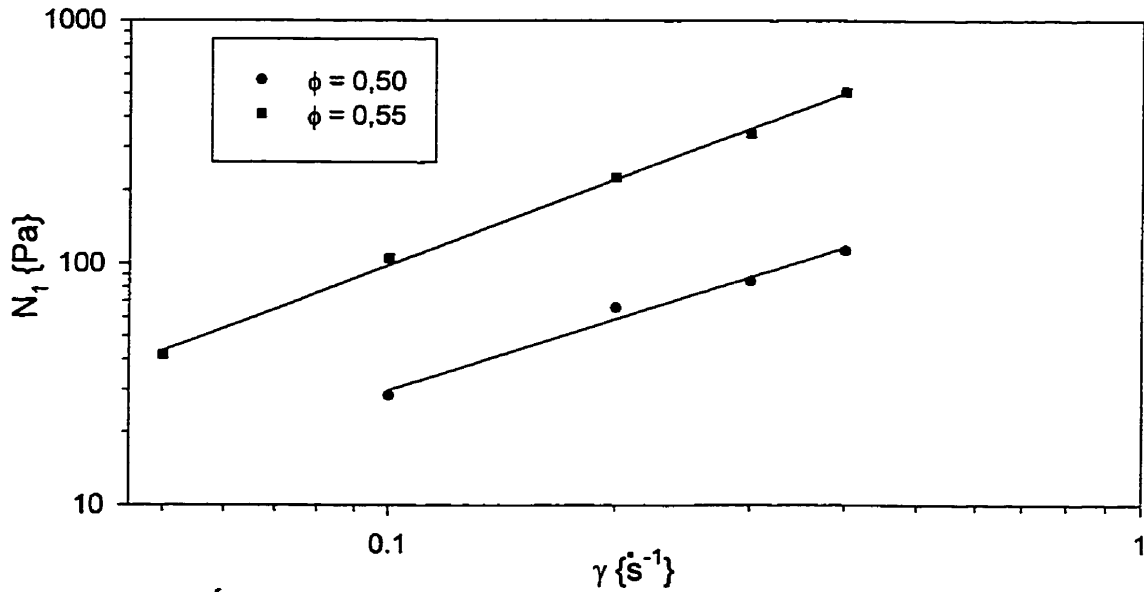
**Figure 3. 17** Évolution de la contrainte normale sous différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)



**Figure 3. 18** Évolution de la contrainte normale sous différents taux de cisaillement ( $\phi = 0,55$ , particules : sphericiel)



**Figure 3. 19** Illustration des différents comportements des suspensions en fonction de la déformation ( $\phi = 0,50$ ,  $\dot{\gamma} = 0,4 \text{ s}^{-1}$ , particules : sphericiel)



**Figure 3. 20** Évolution du palier de contrainte normale en fonction du taux de cisaillement (particules : sphericiel)

### 3.4 Discussion

Pour expliquer les phénomènes observés durant les essais en transitoire, il faut accepter l'hypothèse que le conditionnement des échantillons est satisfaisant, c'est-à-dire qu'au début d'un essai les particules de la suspension soient près d'être uniformément distribuées (suspension isotrope). Du moins, on peut facilement accepter que les suspensions sont dans un état de référence comparable au début d'un essai. Comme il a déjà été mentionné, le conditionnement de nos échantillons n'était pas optimal, c'est ce qui explique pourquoi il y a un certain écart entre les valeurs des premiers paliers de viscosité. Le principe soutenant cette hypothèse sera expliqué au chapitre 4.

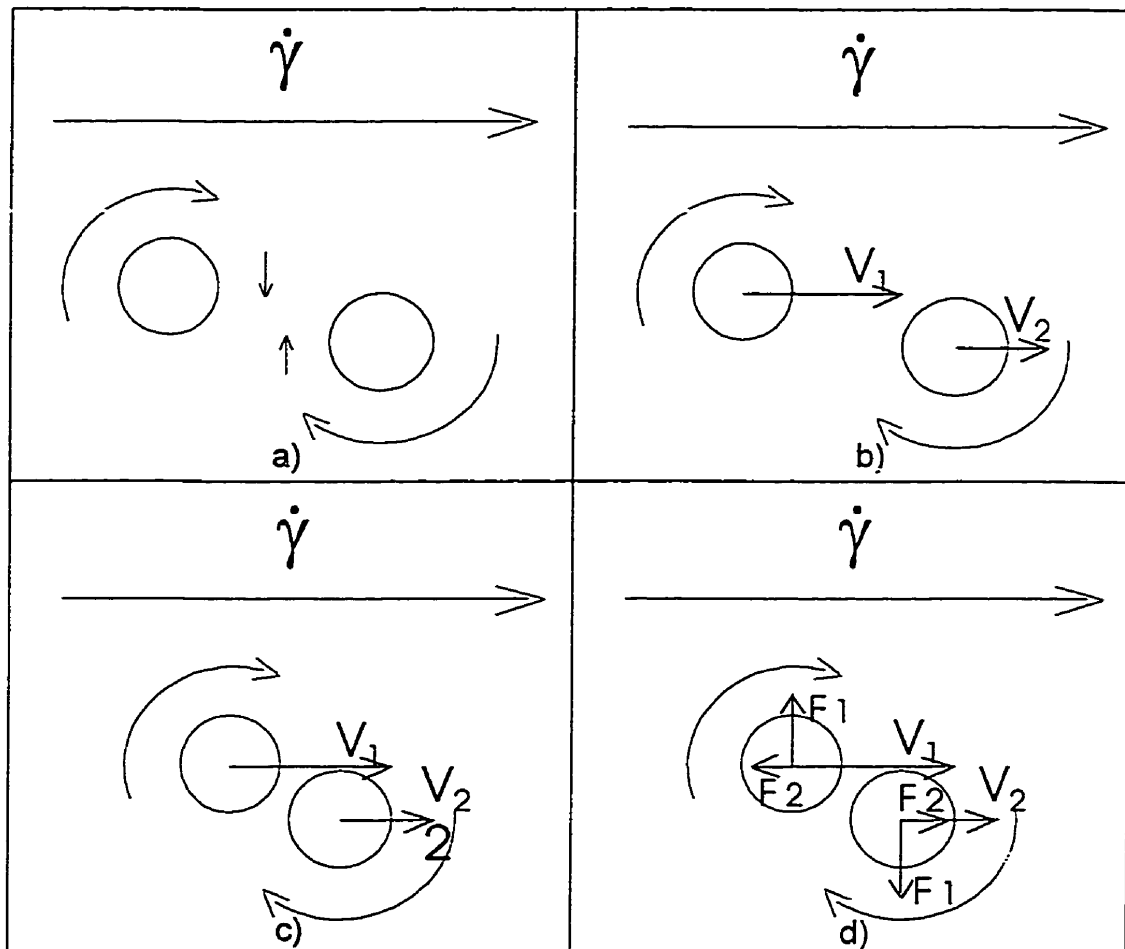
Le phénomène que nous observons, soit l'augmentation radicale de la viscosité jusqu'à la formation du second palier, en est clairement un de rhéo-épaississement. Dans le domaine des suspensions, les chercheurs s'entendent sur le principe que le rhéo-épaississement est dû à une modification de l'arrangement spatial des particules dans la suspension. Par contre, le mécanisme par lequel se produit cette restructuration de la suspension n'est pas bien connu et on en est encore dans le domaine de la spéculation. À la suite des observations décrites dans ce chapitre, une théorie a été élaborée pour tenter d'expliquer le phénomène par une approche qui, à notre connaissance, n'a jamais été encore proposée.

Une particule soumise à un champ de cisaillement se voit imposer un mouvement de rotation (figure 3.21-a). En plus du mouvement de rotation, le

cisaillement impose aux particules un mouvement de translation qui devient non négligeable à déformations élevées. Tant que les particules sont assez loin les unes des autres, le déplacement des particules est solidaire avec l'écoulement de l'ensemble du fluide. Il n'y a aucune raison d'y avoir, à ce moment là, une augmentation de viscosité en fonction de la déformation imposée. Cela expliquerait la présence du premier palier de viscosité lorsque la déformation de la suspension est faible. Sur les figures présentant les résultats des essais en fluage et en démarrage, la viscosité de ce premier palier est comparée aux prédictions du modèle de Krieger et Dougherty qui représente bien les tendances des modèles newtoniens classiques de la viscosité des suspensions. De façon assez remarquable, ce modèle réussit à prédire adéquatement (mais non parfaitement) la viscosité du premier palier avec des paramètres entièrement théoriques. Cela porte à croire que pour de faibles déformations la suspension adopte le comportement newtonien du fluide matrice.

Selon le taux de cisaillement (gradient de vitesse de déformation), la vitesse de translation des particules sera différente en fonction de leur position, selon un axe perpendiculaire à l'écoulement (figure 3.21-b). La différence de vitesse entre deux particules légèrement décalées, comme illustrée à la figure 3.21-b, provoque leur rapprochement (figure 3.21-c). On peut émettre l'hypothèse que lorsque deux particules sont très proches l'une de l'autre, le mouvement de rotation des particules, aidé par le mouvement du fluide qu'elles entraînent dans leurs rotations, fait que les particules se repoussent selon un axe perpendiculaire à l'écoulement (figure 3.21-d), cela ne serait pas étranger à la présence des contraintes normales.

Si la suspension est relativement diluée, les particules ont assez d'espace pour se déplacer et se replacer l'une au dessus de l'autre. Par contre, si la suspension est assez concentrée, les particules ont de fortes chances de rencontrer d'autres particules bloquant leur déplacement. Les particules, se bloquant les unes les autres, forment une nouvelle structure plus rigide. Cela expliquerait le second palier de viscosité dont le niveau serait fonction de la rigidité de la nouvelle structure formée.



**Figure 3.21** Mouvement relatif des particules d'une suspension sous l'influence d'un cisaillement



On peut émettre l'hypothèse que la rigidité de la structure est, à la fois, fonction de l'intensité de la contrainte de cisaillement, qui provoque et maintient le rapprochement des particules, et de la vitesse de cisaillement, qui provoque la rencontre des courants de fluide, induits par le mouvement de rotation des particules (voir figure 3.21 a)). La rencontre de ces courants nuit à la rotation des particules et à la mobilité du fluide, donc à la mobilité de l'ensemble de la suspension, augmentant par conséquent sa viscosité. La présence de ces courants induits a tendance à repousser les particules les unes des autres, c'est pourquoi la contrainte imposée joue un rôle important parce que selon qu'elle sera plus ou moins élevée, elle maintiendra la proximité des particules de la façon illustrée à la figure 3.21. Plus les particules sont maintenues près les unes des autres, plus l'effet des courants induits sera important.

Un aspect qui vient appuyer cette théorie est que les phénomènes observés expérimentalement se produisent en fonction du niveau de déformation subi par les suspensions. Pour que les particules se rencontrent, la particule incidente (la plus rapide) doit parcourir une certaine distance pour rattraper la particule la précédant. Cette distance n'est pas directement la distance séparant deux particules dans une suspension de particules uniformément distribuées au repos, parce que, sous cisaillement, les deux particules se déplacent. La particule incidente devra parcourir la distance séparant les deux particules au repos, additionnée de la distance parcourue par la particule qu'elle rencontre, durant le temps nécessaire à ce qu'elle la rejoigne. Par contre, cette distance n'est pas fonction du taux de cisaillement. La distance à parcourir par la particule incidente est uniquement fonction de la position des particules. Deux paires de

particules situées à des hauteurs différentes dans l'entrefer (donc à des vitesses différentes), mais ayant une position relative identique, une particule par rapport à l'autre, se rencontreront après avoir subie la même déformation. Si deux particules sont soumises à des gradient de vitesses de cisaillement différents, elles se rencontreront toujours au même endroit mais ce n'est que le temps nécessaire à cette rencontre qui sera différent (voir l'annexe A pour la démonstration de ces affirmations). Dans une suspension parfaitement isotrope, les particules devraient toutes se rencontrer après avoir subie la même déformation (parce qu'elles devraient toutes avoir la même position relative, les unes par rapport aux autres) et la suspension devrait avoir une augmentation de viscosité très abrupte vers le second palier. Selon la concentration volumique, il pourrait y avoir un repositionnement des particules lors de la formation de la structure, ce qui pourrait nécessiter une certaine déformation supplémentaire, retardant l'atteinte du second palier. Mais puisque les suspensions parfaitement isotropes sont très difficilement réalisables, la montée vers le second palier s'étendra toujours sur une certaine plage de déformation. Par contre, la montée vers le second palier devrait apparaître à une déformation de plus en plus faible avec l'augmentation de la concentration volumique puisque la distance entre les particules diminue, et c'est justement ce que l'on observe avec nos suspensions.

En développant cette théorie mathématiquement (voir annexe A) on peut prédire la déformation à laquelle la formation de la structure débute, c'est-à-dire lorsque la viscosité commence son augmentation à la fin du premier palier. En supposant que les particules ont un arrangement de type cubique centré lorsque la suspension est à

l'équilibre, la déformation critique à laquelle deux particules se rencontreront est calculée à partir des équations suivantes :

$$d = \sqrt[3]{\frac{8\pi a^3}{3\phi}} \quad (3.2)$$

$$\gamma_c = \frac{(d - 2a)\sqrt{1 - \frac{H^2}{d^2}}}{H} \quad (3.3)$$

où  $d$  est la distance entre le centre de deux particules dans une suspension isotrope avec un arrangement de particules cubique centré,  $a$  le rayon des particules,  $H$  la différence de positions axiales entre les deux particules et  $\gamma_c$  la déformation critique.

Les premières particules à se rencontrer seront celles dont les différences de vitesses seront les plus élevées : celles qui auront la plus grande différence entre leurs positions axiales et qui peuvent se rencontrer. Dans le cas limite, les particules peuvent au maximum avoir une différence entre leur position axiale égale à leur diamètre. En effectuant les calculs avec  $H = 8 \mu\text{m}$  (le diamètre des particules), on obtient les résultats présentés au tableau 3.2.

Expérimentalement, les valeurs de  $\gamma_c$  correspondent bien avec les valeurs de déformation auxquelles les augmentations de viscosité débutent, à la fin des premiers paliers. Les valeurs expérimentales sont légèrement inférieures, mais cela peut être attribué au fait que les suspensions ne sont pas parfaitement isotropes. Dans ce cas là, certaines particules sont plus rapprochées les unes des autres que la moyenne des

**Tableau 3. 2 Déformation critique en fonction de la fraction volumique pour les suspensions de type sphericel**

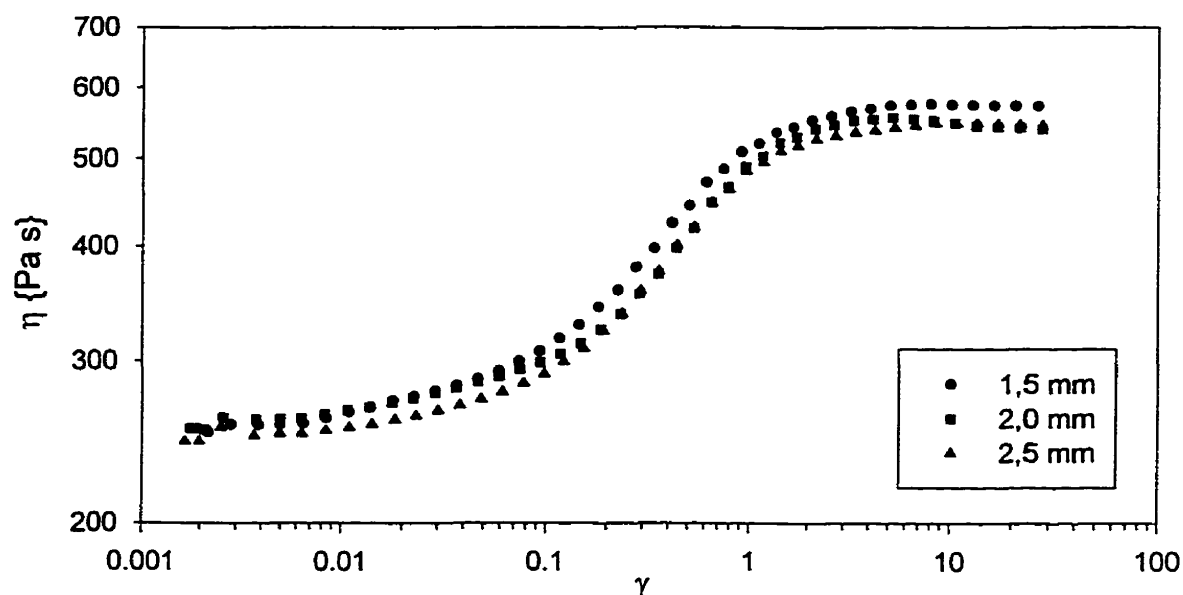
Fraction volumique ( $\phi$ )	Distance centre à centre (D)	Déformation critique ( $\gamma_c$ )
0,40	11,0 $\mu\text{m}$	0,260
0,45	10,6 $\mu\text{m}$	0,213
0,50	10,2 $\mu\text{m}$	0,174
0,55	9,9 $\mu\text{m}$	0,141

particules de l'ensemble de la suspension et entrent en contact à des déformations plus faibles. Une autre explication pourrait être que les particules n'ont pas besoin de se toucher physiquement, seulement d'être très près les unes des autres, pour connaître les effets menant à la formation d'une structure. Les forces hydrodynamiques dues à la rotation du fluide autour des particules, qui sont de plus en plus fortes lorsque les particules sont près les unes des autres, sont probablement suffisantes pour provoquer le déplacement des particules l'une au dessus de l'autre (déplacement qui, dans une suspension concentrée, est bloqué par la proximité des particules voisines).

L'essai à contrainte positive / contrainte négative nous apporte un autre argument en faveur de cette théorie. Lorsque le sens de l'écoulement est inversé, la viscosité initiale de cet essai est supérieure à la viscosité du premier palier mais quand même inférieure à celle du second palier. Cela nous permet de croire que la structure formée dans la direction positive est «orientée» dans cette direction. Si la structure était aléatoire, la viscosité initiale de l'essai à contrainte négative serait la même que celle du

second palier. Le fait que la viscosité initiale est plus élevée que celle du premier palier doit être dû à la faible distance entre certaines particules, ce qui nuit, entre autres, à leur mouvement de rotation. Ensuite la viscosité diminue et semble tendre vers la valeur du premier palier avant de remonter abruptement jusqu'à la valeur du second palier. C'est une indication que la suspension passe par un état se rapprochant de l'état où les particules sont uniformément distribuées avant de reformer une nouvelle structure identique à la première mais orientée dans la direction opposée.

Un autre argument en faveur de cette théorie est le fait que l'augmentation de la viscosité vers le second palier se produit de façon identique quel que soit l'entrefer entre les deux plateaux. Des essais en fluage ont été effectués avec la suspension contenant 50% en volume de billes de verre, en utilisant des entrefers de 1,5mm, 2mm et 2.5mm à une contrainte de cisaillement de 10 Pa. Les résultats de ces essais sont présentés à la figure 3.22. Les faibles différences observées entre les résultats sont de l'ordre des écarts entre deux essais réalisés dans les mêmes conditions. Ces différences sont probablement dues à la non homogénéité des suspensions au départ des essais. Ce résultat confirme que le phénomène de rhéoépaississement est vraiment fonction de la déformation, ce qui revient à dire qu'il est fonction du déplacement des particules. De plus, cela montre qu'il n'y a pas de glissement aux parois, car le cas échéant la suspension se comporterait différemment en fonction de l'entrefer. La présence de glissement devrait se faire sentir plus fortement lors des essais avec de faibles entrefers et diminuer le niveau de viscosité de ces essais. Dans notre cas, c'est plutôt la tendance contraire qui se produit faiblement.



**Figure 3. 22 Résultats d'essais en fluage réalisés avec différents entrefers ( $\phi = 0,50$ ,  $\sigma = 10$  Pa, particules : sphericiel)**

La formation du second palier de viscosité induit obligatoirement des forces normales  $F_1$  (voir la figure 3.21-d) et, de façon sûrement moins importante, la différence de vitesse entre les particules provoque les forces de réaction  $F_2$ . (Les figures présentées sont en deux dimensions, mais le phénomène peut être facilement visualisé selon la troisième dimension en imaginant que les particules peuvent aussi être décalées selon un axe normal au plan de la feuille. Cela induit d'autres forces de réaction (appelons les  $F_3$ ) normales au plan de la feuille qui sont probablement assez faibles compte tenu qu'il n'y a pas, dans cette direction, de courants de fluide induit par la rotation des particules). L'existence des forces normales  $F_1$  a été clairement démontrée par les essais en démarrage, ce qui vient encore une fois appuyer la théorie. Le pic en contrainte normale

qui apparaît immédiatement avant l'atteinte du second palier lorsque la vitesse de cisaillement est suffisamment élevée témoigne du niveau des forces de répulsion entre les particules, induites de façon hydrodynamique. Les particules de la suspension, avant d'être positionnées correctement dans la structure, doivent se repousser à l'aide des forces hydrodynamiques, et peut être même s'entrechoquer les unes les autres, pour atteindre leurs positions finales. Il est facilement concevable que les forces agissant sur les particules soient plus élevées au moment de ce repositionnement et qu'ensuite elles rediminuent jusqu'à l'atteinte d'un équilibre. Il n'est donc pas surprenant qu'il y ait un maximum dans les valeurs de contraintes normales immédiatement avant la stabilisation complète de la structure lorsque les vitesses de cisaillement sont plus élevées. À ces plus hautes vitesses de cisaillement, les particules sont forcées de se repositionner plus rapidement, concentrant l'action des forces normales dans une plus courte période de temps. Aux plus faibles vitesses de cisaillement, le repositionnement se fait de façon plus lente et moins intense ce qui permet d'atteindre l'équilibre plus graduellement.

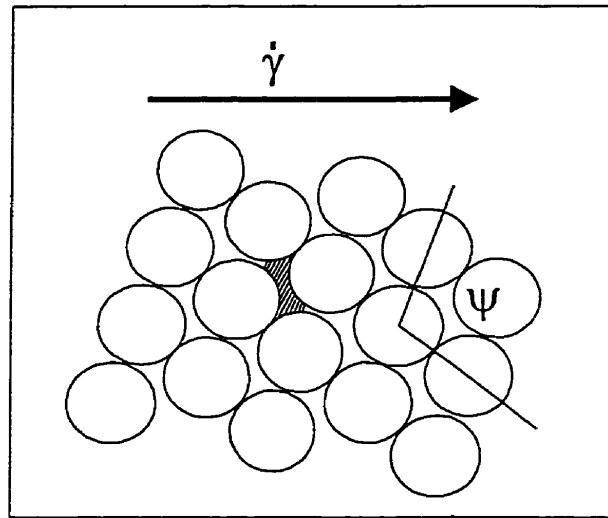
La nouvelle structure atteinte par la suspension en est une où chaque particule tente de trouver une position équilibrant les forces qui agissent sur elle. Cet équilibre est atteint lorsque la contrainte normale se stabilise pour former un palier. Le niveau de ce palier dépend fortement du taux de cisaillement et de la fraction volumique. L'action du taux de cisaillement se fait au niveau du mouvement de rotation des particules. Plus le taux de cisaillement est élevé, plus la vitesse de rotation est élevée et plus les courants de fluide induits sont forts, augmentant la répulsion hydrodynamique entre les particules. L'action de la fraction volumique se fait évidemment au niveau de la

distance entre les particules. Plus les particules sont près les unes des autres, plus le courant induit par une particule affectera ses voisines.

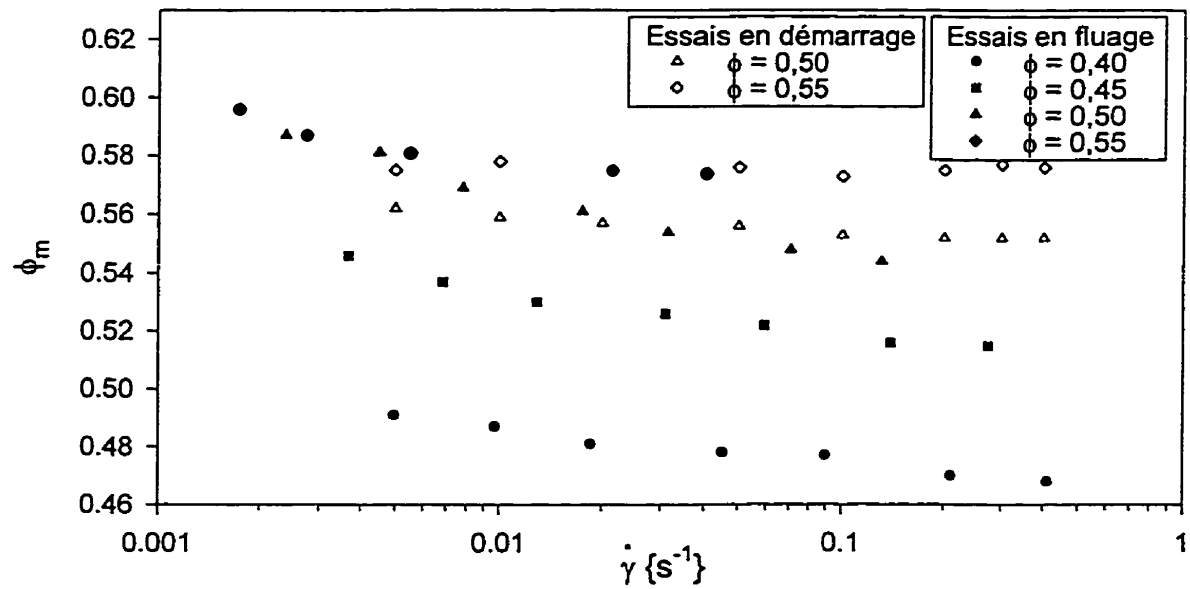
La structure, formée par cisaillement, qui apparaît être la plus probable est illustrée à la figure 3.23. Cette structure correspond parfaitement à tous les points apportés dans nos hypothèses. Bien sûr, dans la réalité des suspensions, la structure ne sera jamais parfaitement identique à celle illustrée à la figure 3.23. Elle comportera des «trous», des endroits manquant de particules et des régions où l'alignement de la structure ne sera pas parfait. Selon la concentration volumique de la suspension, l'angle d'alignement de la structure ( $\psi$ ) ne devrait pas être le même. En diminuant la fraction volumique de particules, cet angle devrait diminuer, augmentant le volume des espaces entre particules (représentés par la région hachurée sur la figure 3.23). Puisque dans cette structure les particules sont plus compactées que dans la suspension isotrope, il devra y avoir des régions de la suspension un peu plus diluées pour tenir compte de la conservation de la masse. Donc, il y a probablement organisation de gros amas de particules qui agissent à leur tour comme de grosses particules répétant exactement le même mécanisme de formation de structure dans l'ensemble de l'entrefer.

On peut obtenir un indice du niveau de compaction de la structure en calculant, à l'aide de l'équation de Krieger et Dougherty (1959), la fraction volumique maximale de la suspension au second palier de viscosité. La figure 3.24 présente les résultats de ces calculs pour les essais en fluage et en démarrage à chacune des fractions volumiques. On s'aperçoit que la compaction maximale se rapproche toujours de la fraction





**Figure 3.23** Disposition probable des particules dans la structure induite par cisaillement



**Figure 3. 24** Compaction maximale des suspensions lors de la formation de la structure (particules : sphericiel)

volumique de la suspension lorsque la structure est établie, au second palier de viscosité. Et cela est d'autant plus vrai lorsque la suspension est plus concentrée. On observe un écart de 0,07 entre la compaction maximale de la structure et la fraction volumique de la suspension contenant 40 % en volume de particules, tandis que cet écart est réduit à moins de 0,03 pour la suspension contenant 55 % en volume de particules.

Par contre, cette structure n'est pas parfaitement stable. Après que le second palier de viscosité ait été établi pendant un certain temps, le phénomène de creusement de l'échantillon apparaît toujours, accompagné par l'écoulement d'une faible quantité de suspension hors des plateaux. Quelques essais en géométrie Couette ont été effectués, sur la suspension de billes de verre de type « sphericiel » à une fraction volumique de 0,55 (non présentés dans ce mémoire), et le phénomène du creusement y a aussi été observé. Comme cela a été mentionné précédemment, ce phénomène est vraiment dû aux particules. Il est possible que ce phénomène soit limité à la surface de l'échantillon, causé par la présence des particules à l'interface entre la suspension et l'air ambiant, mais il est aussi possible que cela soit causé par le bris partiel ou total de la structure. On soupçonne que la migration de particules induite par cisaillement débute après ce phénomène.

Le seul élément qui cloche entre la théorie et ce qui est observé expérimentalement est le fait que le niveau de viscosité du second palier en fonction du taux de cisaillement se comporte de façon légèrement différente en fluage et en démarrage. En fluage, la viscosité du second palier croît avec le taux de cisaillement

alors qu'en démarrage elle est pratiquement constante. On pourrait croire que le niveau du second palier est fonction uniquement de la contrainte, mais cela ne tient pas pour expliquer ce qui se passe en démarrage, parce que la contrainte mesurée durant ces essais augmente avec le taux de cisaillement de façon comparable aux essais en fluage.

En considérant que nous avons utilisé deux techniques de mesure différentes et que les échantillons présentent des comportements complexes, il est possible que ce qui semble être deux courbes différentes n'en soient, en réalité, qu'une seule. D'ailleurs on pourrait tracer une courbe passant par l'ensemble des valeurs de viscosité des seconds paliers pour les deux types d'essais, à chaque concentration volumique. Dans ce cas là, la viscosité du second plateau tendrait vers une valeur limite, en fonction de la vitesse de cisaillement, qui pourrait correspondre à la rigidité maximale de la structure. Cela mériterait d'être approfondi.

Le phénomène de rhéoépaississement, tel que nous l'avons rapporté dans ce chapitre, à aussi été observé par Gadala-Maria et Acrivos (1980) avec des suspensions concentrées de sphères de polystyrène (diamètre de 40 à 50  $\mu\text{m}$ ) dans un mélange d'huile de silicone lors d'essais en géométrie Couette. Ils ont eux aussi attribué ce phénomène à la formation d'une structure dans la suspension, se formant en fonction de la déformation et non en fonction du taux de cisaillement, comme plusieurs auteurs le prétendent (Barnes (1989)). Il faut préciser que la définition du terme « rhéoépaississement » est une augmentation de la viscosité en fonction du taux de cisaillement. Nous faisons une légère entorse à cette définition pour y inclure l'augmentation de la viscosité en fonction de la déformation, à défaut d'un autre mot

pour qualifier ce phénomène.

Chow et al. (1994) ont aussi observé le phénomène de rhéoépaississement lors d'essais en géométrie Couette et en géométrie plateaux parallèles, sur des suspensions de sphère de poly(méthyle méthacrylate) (PMMA) dans une huile newtonienne. Ils n'ont, par contre, pas expliqué le phénomène.

## **Chapitre 4 : Essais en dynamique**

### **4.1 Introduction**

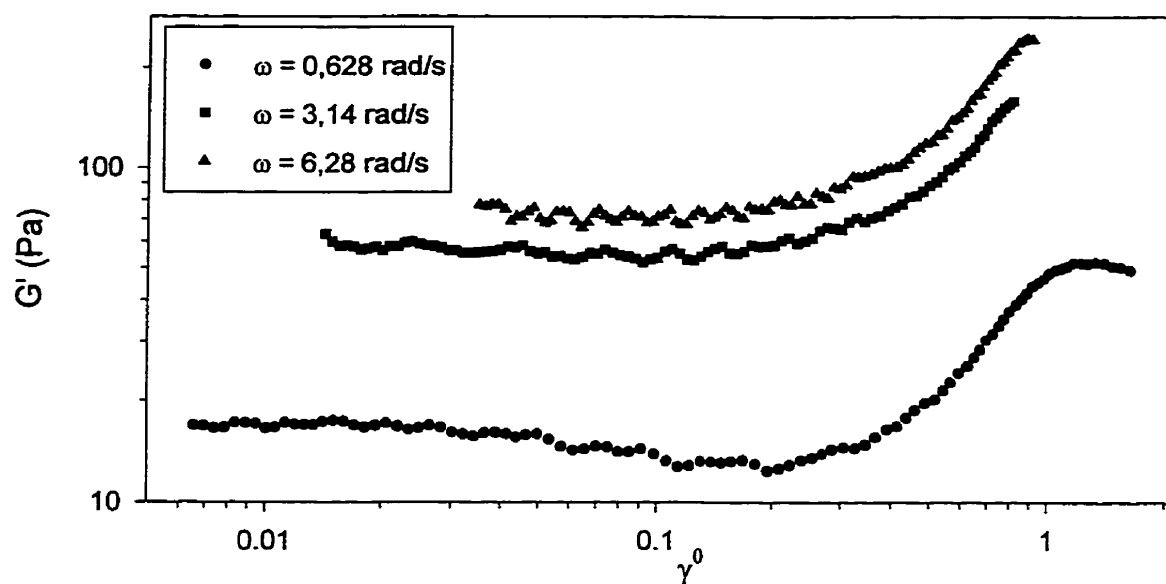
Ce chapitre présente les résultats des essais en dynamique effectués principalement sur les suspensions de billes de verre de type « sphericel ». Le comportement de ces suspensions est étudié en fonction de la fréquence d'oscillation et de la fraction volumique. Ces essais ont permis de confirmer le phénomène d'induction de structure se produisant dans les suspensions concentrées lorsque sous l'effet d'un cisaillement. De plus, ils ont mis en évidence l'apparition d'un comportement élastique des suspensions concentrées lors de la formation de la structure. Ces phénomènes ainsi que le mécanisme du conditionnement des échantillons sont expliqués en détails dans la section discussion suivant la présentation des résultats.

### **4.2 Résultats des essais réalisés avec les suspensions de billes de verre de type « sphéricel »**

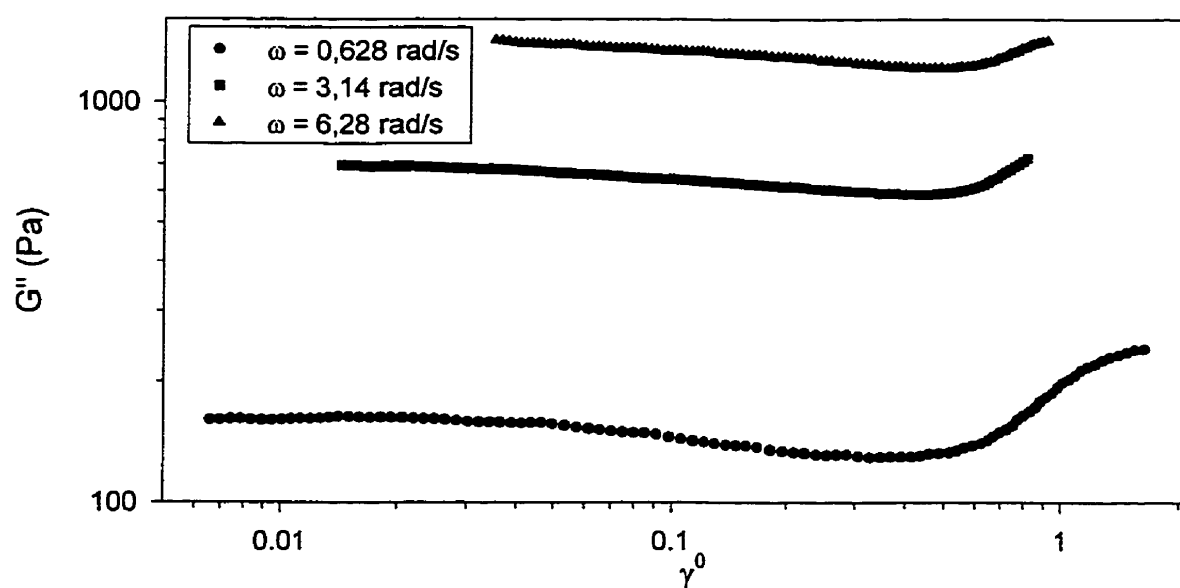
En effectuant les essais en dynamique, un phénomène relié à celui rencontré durant les essais en transitoire s'est produit. On a observé une augmentation importante des modules élastiques et visqueux en fonction de la déformation pour toutes les suspension testées. Ce phénomène s'accompagne toujours d'une modification de la forme du signal de déformation (les essais en dynamique sont effectués à contrainte

imposée) qui s'éloigne de la forme sinusoïdale avec l'augmentation des modules. Ce phénomène a été étudié en fonction de la fréquence d'oscillation et de la fraction volumique.

Premièrement, regardons ce qui se produit en fonction de la fréquence d'oscillation en maintenant la fraction volumique, constante ( $\phi = 0,50$ ) d'un essai à l'autre. Les essais ont été réalisés à trois différentes fréquences d'oscillation, soit 0,628, 3,14 et 6,28 radians par seconde (respectivement 0,1, 0,5 et 1 Hz). Dans les essais en dynamique, la majeure partie de l'information pertinente de ces essais se retrouve condensée dans les courbes des modules élastique et visqueux. Dans notre cas, on remarque que dans la première partie des courbes, pour les régions des plus faibles amplitudes de déformation, le module élastique (figure 4.1) et le module visqueux (figure 4.2) diminuent d'abord faiblement avec l'augmentation de l'amplitude de la déformation. À une certaine amplitude de déformation, les deux modules augmentent de façon assez abrupte. Pour le module élastique, à toutes les fréquences d'oscillation, cette augmentation spectaculaire se produit approximativement toujours à la même amplitude de déformation (entre 0,1 et 0,2). Le module élastique augmente, à partir d'une valeur pratiquement négligeable, jusqu'à une valeur représentant une fraction importante du module visqueux (plus de 20 %). Le module visqueux, quant à lui, débute son augmentation à une amplitude de déformation plus élevée que le module élastique (entre 0,5 et 0,6) et, comme le module élastique, toujours la même quelle que soit la fréquence d'oscillation. Par contre, l'augmentation du module visqueux est moins prononcée que



**Figure 4. 1** Évolution des modules élastiques à différentes fréquences d'oscillation ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

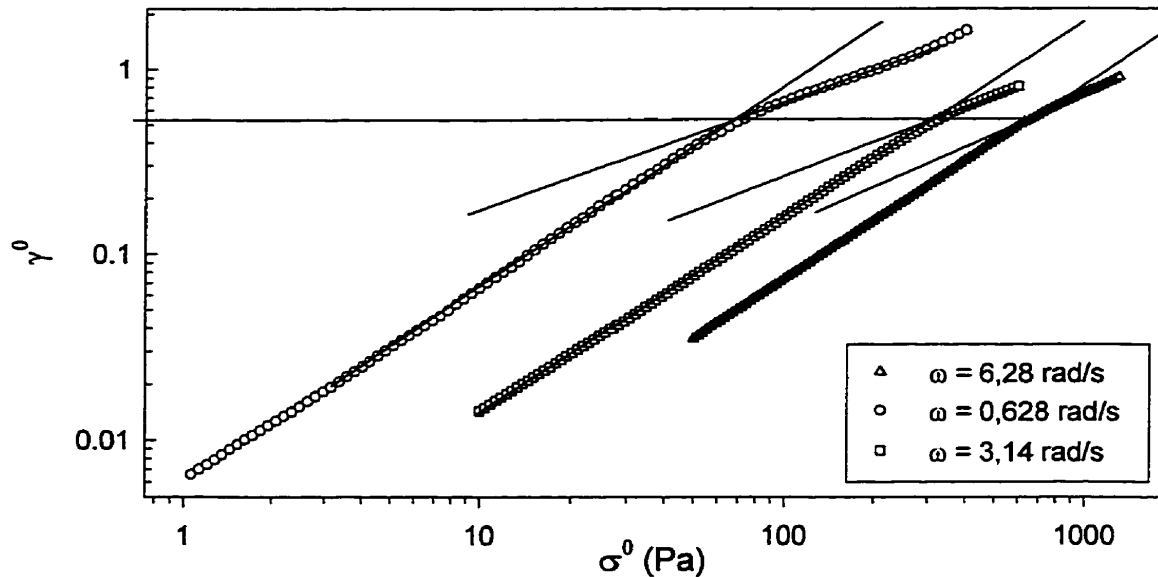


**Figure 4. 2** Évolution des modules visqueux à différentes fréquences d'oscillation ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

celle du module élastique (environ 1/10 d'une décade). Avant qu'il atteigne l'amplitude de déformation marquant le début de son augmentation, le module élastique est très faible comparativement au module visqueux, tellement que dans cette partie de la courbe, l'écoulement peut être pratiquement considéré comme purement visqueux. Après son augmentation, le module élastique demeure toujours inférieur d'environ une décade, par rapport au module visqueux, ce qui indique que c'est toujours les phénomènes d'origine visqueux qui dominent le comportement de la suspension. Par contre, l'augmentation du module élastique est un phénomène non négligeable, qui est un reflet du comportement réel de la suspension.

Lorsque l'on reproduit l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte (figure 4.3), on remarque un changement de pente assez nette à la même amplitude de déformation pour chacune des fréquences. Les pentes tracées sur cette figure sont inversement proportionnelles à celles qu'on obtiendrait sur un graphique du module complexe en fonction de l'amplitude de la déformation. Pour la suspension contenant 50% en volume de particules, ce changement de pente a lieu à une amplitude de déformation d'environ 0,52 pour toutes les fréquences d'oscillation. Cette amplitude de déformation correspond à celle où les modules visqueux débutent leur augmentation. Dans la première partie de ces courbes, aux faibles amplitudes de déformation, la valeur des pentes est de 1,1, ce qui correspond à un comportement légèrement rhéofluidifiant. Dans la seconde partie des courbes, les pentes ont une valeur plus faible (0,62) qui ne change pas en fonction de la fréquence d'oscillation.





**Figure 4.3** Variations de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte pour différentes fréquences d'oscillation ( $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

En traçant les données en fonction de la fraction volumique (figures 4.4 et 4.5), pour des essais effectués à la même fréquence d'oscillation (0,628 radian par seconde), on remarque que les augmentations des deux modules se produisent à des amplitudes de déformation de plus en plus faibles lorsque la fraction volumique est plus élevée. De même, en produisant un graphique de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte (figure 4.6), l'amplitude de la déformation à laquelle le changement de pente se produit augmente avec la diminution de la fraction volumique. Ces amplitudes correspondent toujours avec celles où le module visqueux débute son augmentation. Pour toutes les fractions volumiques, la pente, de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte, à faibles amplitudes de

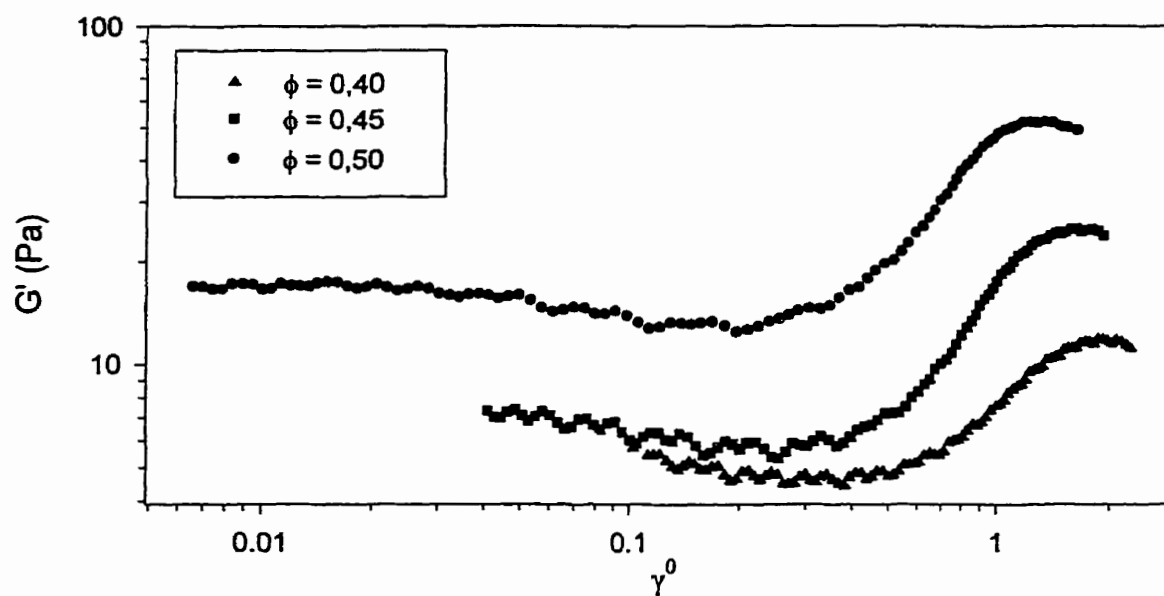


Figure 4. 4 Évolution des modules élastique à différentes concentrations volumique ( $\omega = 0,628$  rad/s, particules : sphericiel)

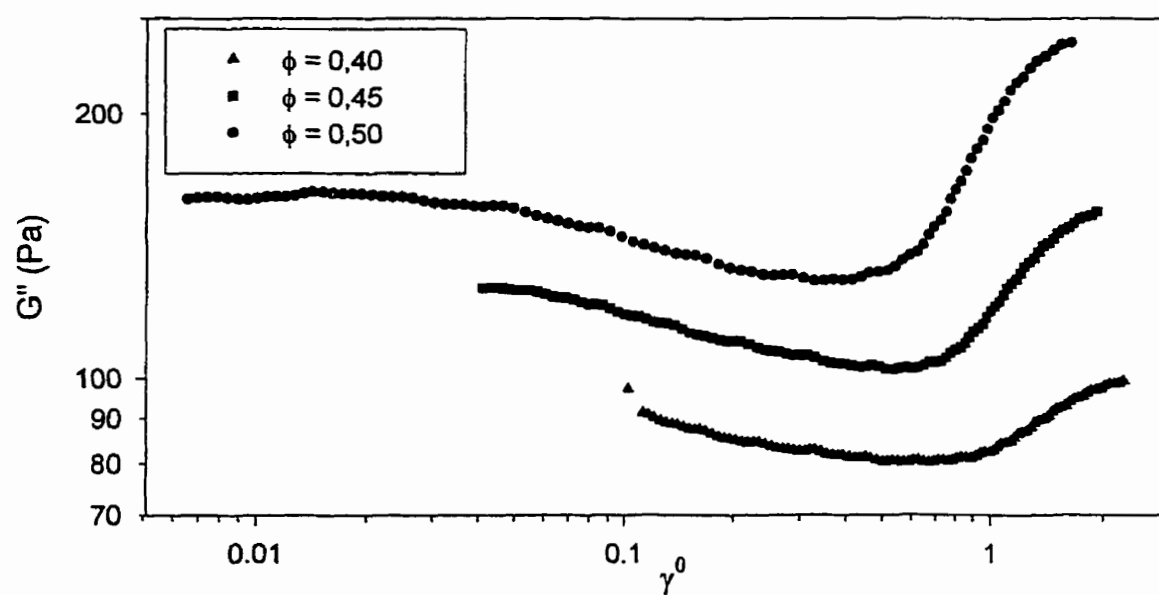
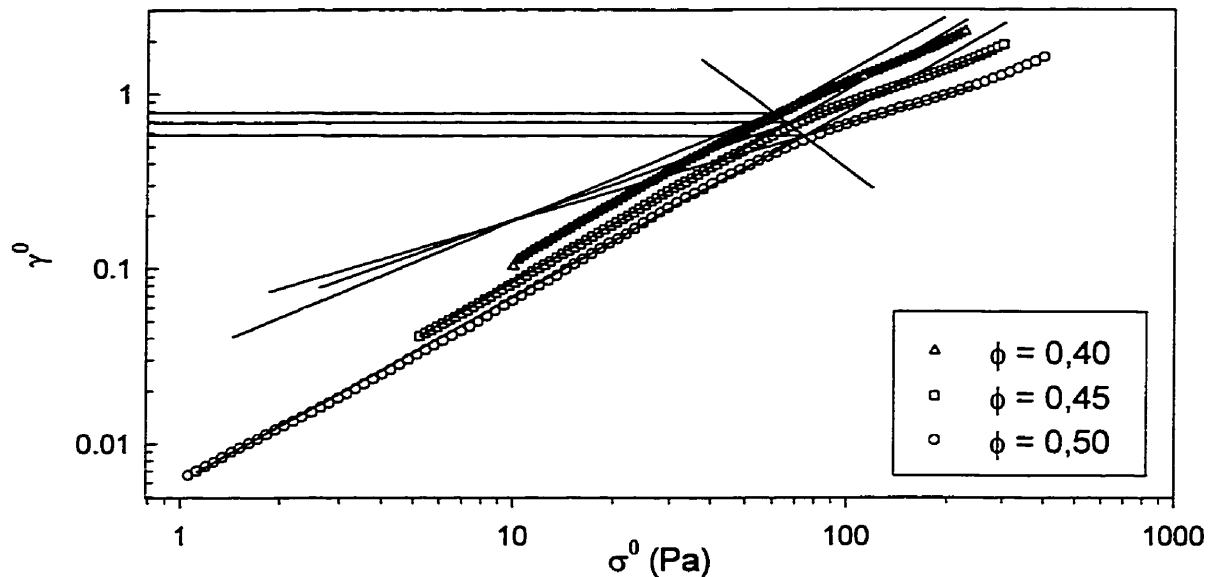


Figure 4. 5 Évolution des modules visqueux pour différentes concentrations volumiques ( $\omega = 0,628$  rad/s, particules : sphericiel)



**Figure 4. 6** Variations de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte pour différentes concentrations volumiques ( $\omega = 0,628$  rad/s, particules : sphericiel)

déformation a toujours une valeur de 1,1. Par contre, la valeur de la seconde pente diminue avec l'augmentation de la fraction volumique. Le tableau 4.1 rapporte les valeurs d'amplitude auxquelles le changement de pente se produit ainsi que les valeurs des pentes de la seconde partie des courbes de la figure 4.6, selon la fraction volumique des suspensions.

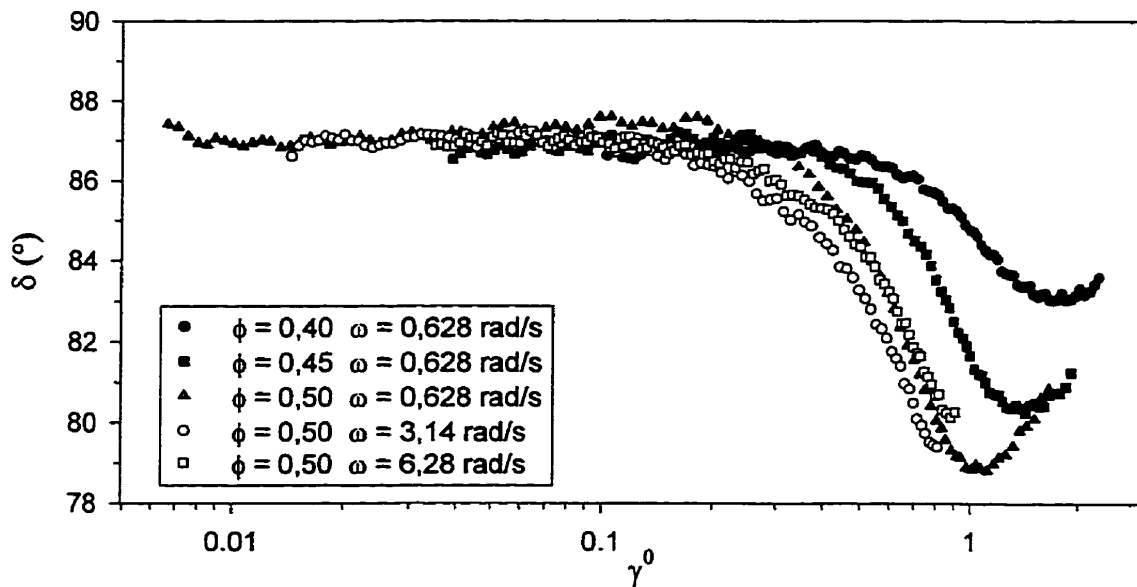
Les essais présentés dans ce chapitre ont tous été réalisés en effectuant un balayage selon l'amplitude de la contrainte, en commençant à une faible amplitude de la contrainte et en l'augmentant graduellement à chaque période d'oscillation. Pour s'assurer que le comportement des modules élastique et visqueux n'est pas causé par une évolution des propriétés de la suspension en fonction du temps (thixotropie),

quelques essais ont été réalisés, dans le sens inverse, en diminuant l'amplitude de la contrainte. À chaque fois, les mêmes résultats ont été obtenus, ce qui est une démonstration convaincante de l'absence d'effet thixotrope dans les phénomènes observés.

**Tableau 4. 1 Résultats des courbes de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte**

Fraction volumique	Amplitude de déformation où se produit le changement de pente	Pente de la seconde partie de la courbe
0,40	0,78	0,79
0,45	0,69	0,70
0,50	0,57	0,62

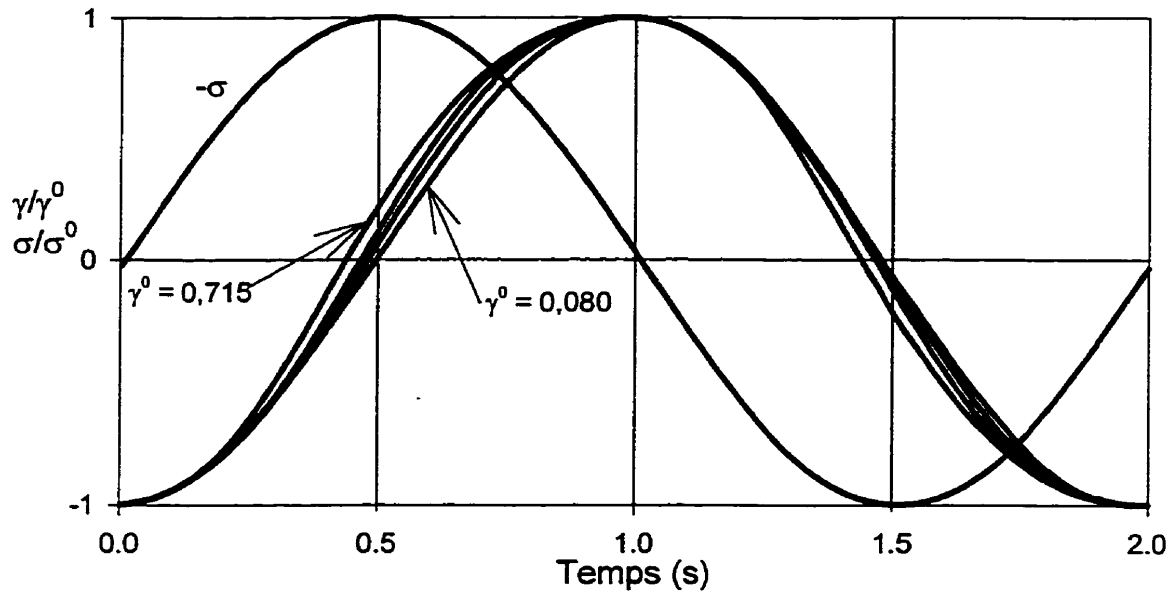
La figure 4.7 présente l'évolution de l'angle de phase entre les signaux de contrainte et de déformation selon l'amplitude de la déformation pour les cinq essais en dynamique présentés. On remarque que l'angle de phase demeure relativement constant autour de  $87^\circ$  pour les faibles amplitudes de déformation, quelle que soit la concentration volumique de la suspension. Cette valeur d'angle de phase témoigne d'un comportement essentiellement visqueux qui se rapproche de celui d'un fluide newtonien. À des amplitudes de déformation avoisinant 0,2, les angles de phase chutent rapidement jusqu'à des valeurs minimales allant de  $83^\circ$  pour une concentration volumique de 0,40 à  $79^\circ$  pour une concentration volumique de 0,50. Cette chute s'effectue en moins d'une décade en amplitude de déformation et est plus prononcée aux concentrations volumiques élevées. Encore une fois, la fréquence d'oscillation a peu



**Figure 4. 7** Évolution de l'angle de phase en fonction de l'amplitude de la déformation (particules : sphericiel)

d'effet sur le phénomène.

Toutes les observations sur les essais en dynamique, présentées depuis le début de ce chapitre, peuvent être mises en relation avec un phénomène particulier, visible dans la forme des signaux de déformation. Lorsque l'amplitude de la déformation atteint une certaine valeur, le signal de la déformation n'est plus parfaitement sinusoïdal. Les sommets de la sinusoïde s'élargissent et l'amplitude de la déformation est plus faible que prévu. Plus l'amplitude de la déformation est élevée, plus le phénomène est évident (figure 4.8). En observant la forme des signaux de déformation en conjoncture avec celles des signaux de contrainte, on peut en déduire que le mouvement oscillatoire est freiné, ou du moins sérieusement gêné, lorsque les signaux de la contrainte sont dans

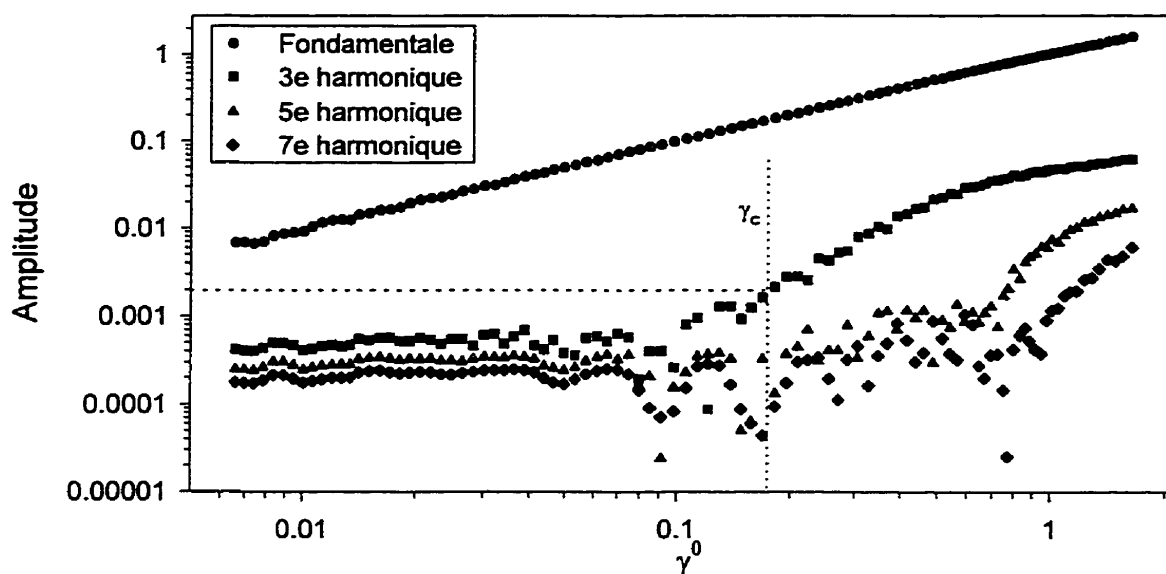


**Figure 4.8** Évolution de la forme des signaux de déformation ( $\omega = 6,28$  rad/s,  $\phi \approx 0,50$ , particules : sphericiel)

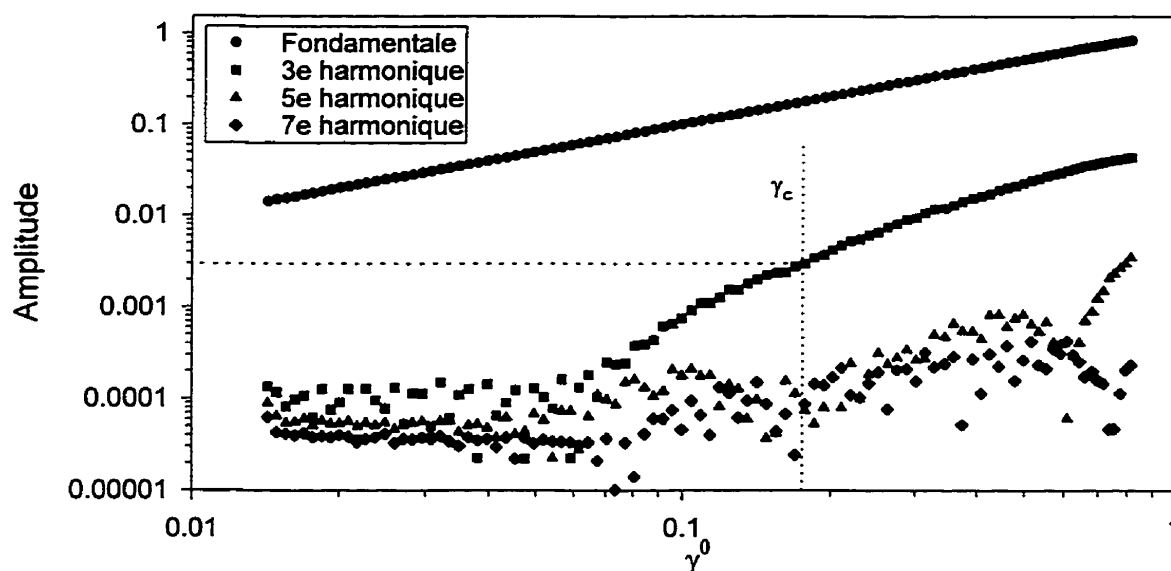
leur retour vers le zéro de leur trajectoire oscillatoire. Par contre, il est difficile de dire à quelle déformation exactement ce phénomène apparaît, en n'examinant que les signaux. Le signal de la déformation peut être décomposé selon ses composantes harmoniques par la transformée de Fourier. Les figures 4.9 à 4.13 présentent les compositions fréquentielles des signaux de la déformation obtenues par transformée de Fourier, pour les cinq essais en dynamique présentés dans ce chapitre. Ces figures montrent les amplitudes de chacune des harmoniques du signal de déformation en fonction de l'amplitude totale de la déformation. Plus de détails sur l'utilisation de la transformée de Fourier sont présentés à l'annexe B. On remarque que la déviation de la forme sinusoïdale du signal de déformation est due à l'addition d'une autre composante fréquentielle aux signaux, la troisième harmonique. À de plus hautes amplitudes de

déformation, la cinquième harmonique, suivie plus loin de la septième, prennent à leur tour une importance non négligeable. Puisque les signaux sont presque symétriques, il n'y a pas de contribution significative des harmoniques pairs. Même avec l'utilisation de la transformée de Fourier, il est très difficile de déterminer à quelle amplitude de déformation la troisième harmonique devient significative, c'est-à-dire qu'elle n'est plus un bruit de mesure. À des amplitudes de déformation correspondant aux  $\gamma_c$  calculés au chapitre 3, on remarque que l'amplitude de la troisième harmonique est toujours approximativement égale à 0,002 quelle que soient la concentration volumique et la fréquence d'oscillation. La question est de savoir si à cette amplitude la troisième harmonique devient réellement significative. Par contre, c'est toujours à cette amplitude de la déformation que la fondamentale (la première harmonique) devient plus élevée que l'amplitude de la déformation, mais ce n'est pas perceptible sur le graphique. Cela veut donc dire que c'est lorsque l'amplitude de la déformation est égale à  $\gamma_c$  que la troisième harmonique devient significative, et que la modification de la forme des signaux de déformation commence. La troisième harmonique a alors pour effet de diminuer l'amplitude des signaux de déformation en élargissant les sommets de la sinusoïde, comme présenté à la figure 4.8.

Lorsque le module élastique atteint son maximum, il se produit le phénomène de creusement de l'échantillon, exactement de la même façon que cela se produit lors des essais en transitoire. On remarque que ce phénomène se produit à des amplitudes de déformation de plus en plus faibles alors que la fraction volumique de la suspension augmente.



**Figure 4. 9** Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)



**Figure 4. 10** Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 3,14$  rad/s,  $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)



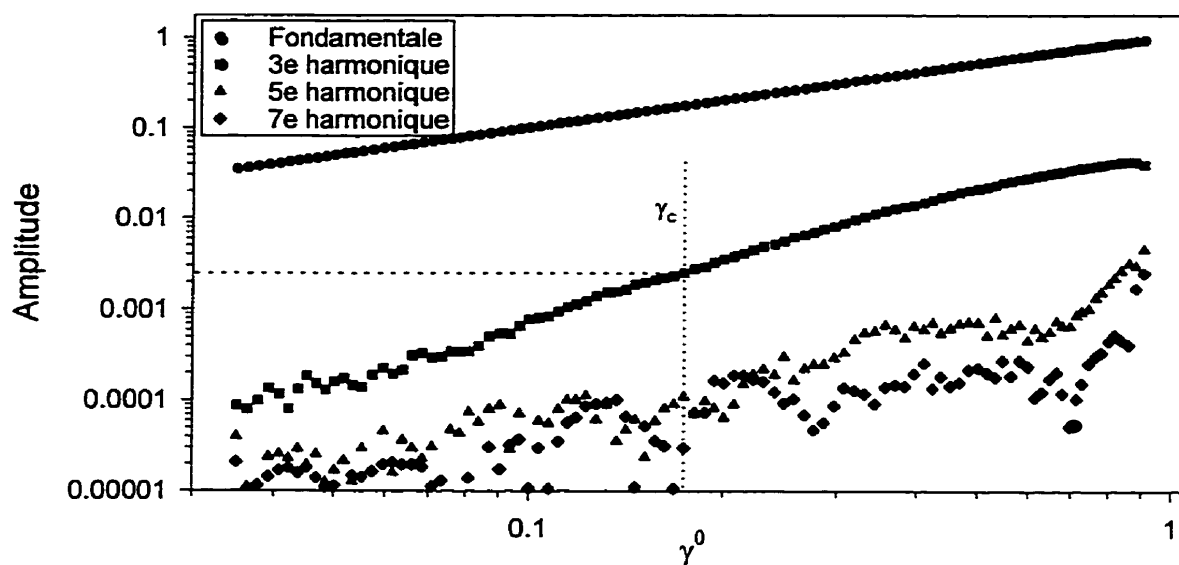


Figure 4.11 Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 6,28 \text{ rad/s}$ ,  $\phi = 0,50$ , particules : sphericiel)

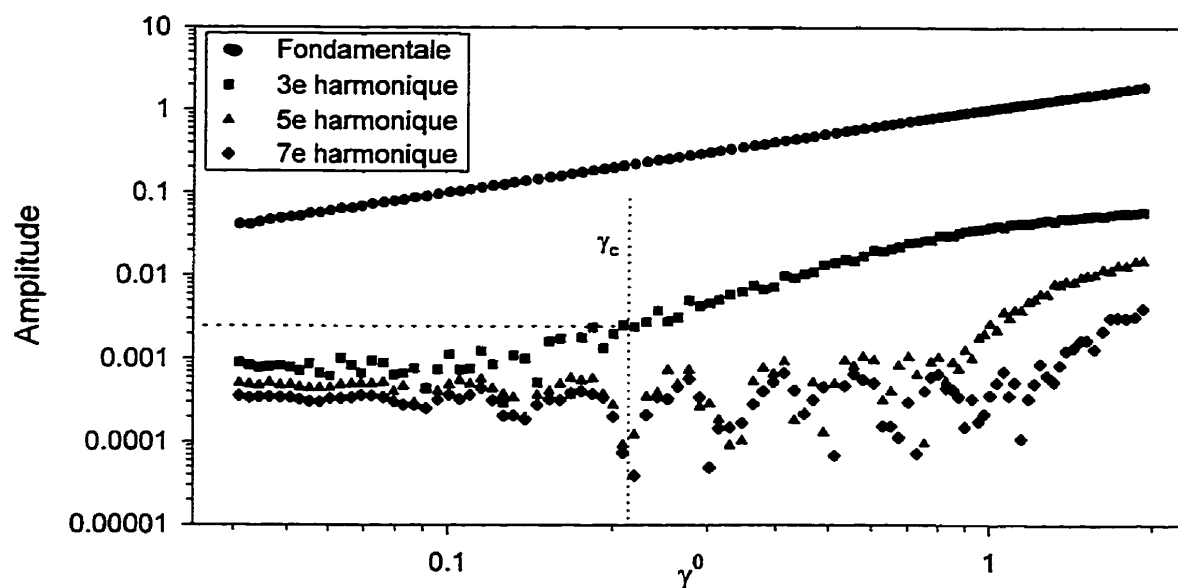
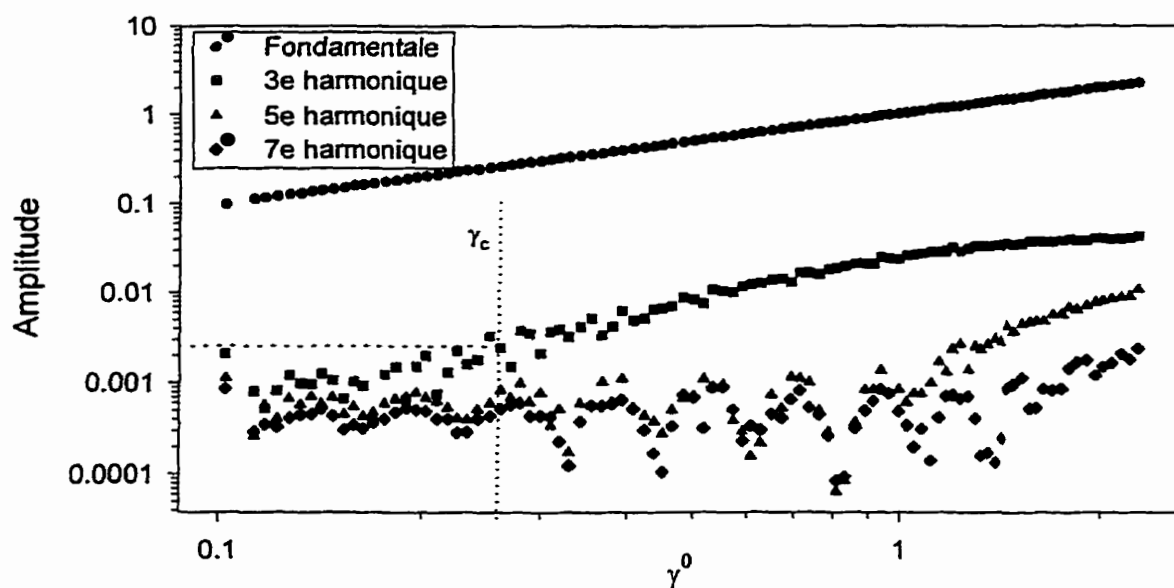


Figure 4.12 Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628 \text{ rad/s}$ ,  $\phi = 0,45$ , particules : sphericiel)



**Figure 4. 13** Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628 \text{ rad/s}$ ,  $\phi = 0,40$ , particules : sphéricel)

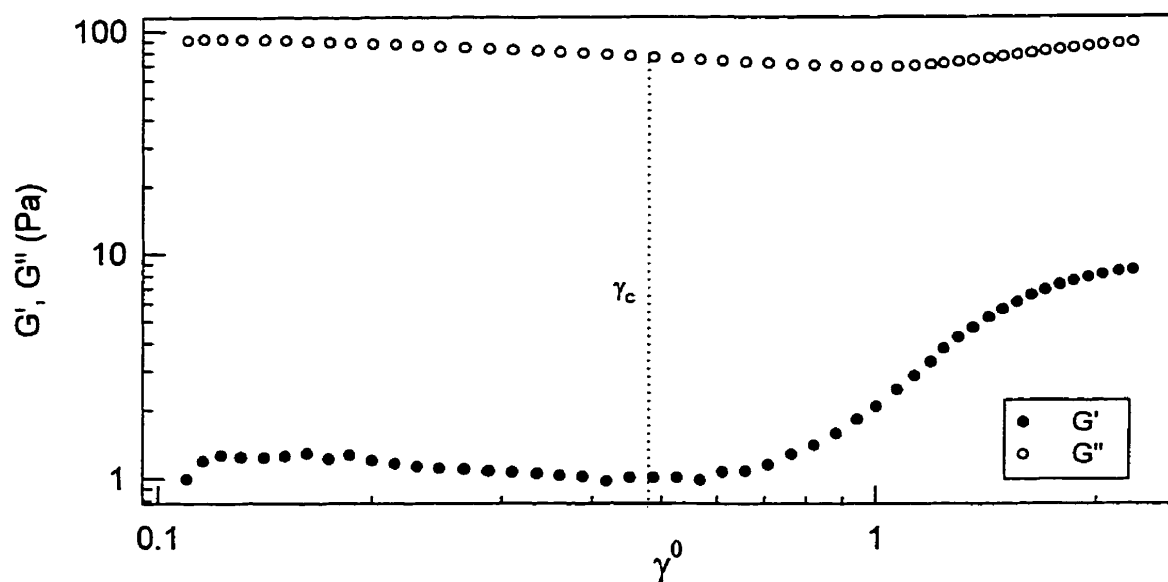
#### 4.3 Résultats des essais sur les autres suspensions

Deux essais en dynamique, qui ont été réalisés dans un but exploratoire au début du projet, permettent de valider nos hypothèses. Ces essais ont été effectués avec les deux autres types de particules présentés au chapitre 2, soit les particules de polypropylène et les billes de verre de type « sub-sieve », toujours en suspension dans la même matrice de polybutène. Pour ces deux essais, la fréquence d'oscillation était de 0,628 radian par seconde (0,1 Hz). On y observe les mêmes phénomènes qu'avec les billes de verre de type sphéricel, soit l'accroissement des modules élastique et visqueux,

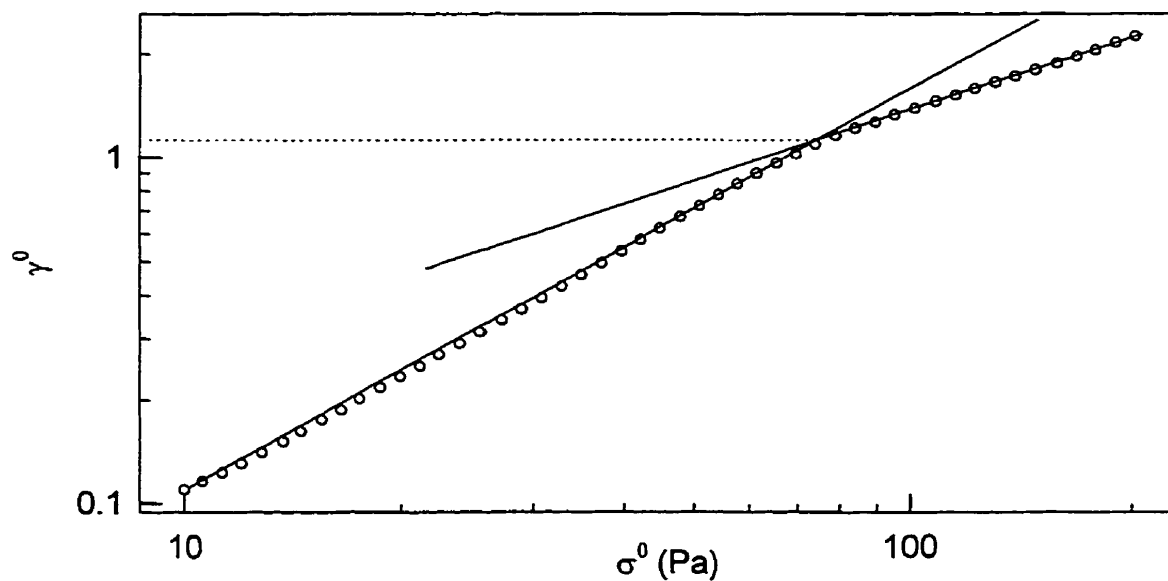
la modification de la forme du signal de la déformation par l'apparition d'harmoniques impaires et le changement de pente dans les courbes de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte. Par contre, les échantillons utilisés lors de ces essais n'ont subi aucun conditionnement.

La figure 4.14 présente l'évolution des modules élastique et visqueux d'une suspension de billes de verre de type « sub-sieve » ( $\phi = 0,25$ ) en fonction de l'amplitude de la déformation. En calculant le  $\gamma_c$  de la suspension de la façon présentée au chapitre 3, on obtient la valeur de 0,48, ce qui correspond assez bien à l'amplitude de la déformation où débute l'accroissement du module élastique. La figure 4.15 présente le graphique de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte. On y remarque un changement de pente pour une valeur de l'amplitude de la déformation d'environ une unité, ce qui correspond à l'amplitude de la déformation à laquelle le module visqueux augmente. C'est normal puisque le module complexe correspond pratiquement au module visqueux. La figure 4.16 montre l'évolution de la forme du signal de la déformation pour différentes amplitudes de la déformation et la figure 4.17 montre comment ce changement de forme du signal se répercute sur la composition fréquentielle du signal. On remarque que la forme des signaux de déformation s'éloigne de plus en plus de la forme sinusoïdale avec l'augmentation de l'amplitude de la déformation et cela se traduit par la présence de la troisième harmonique.

On peut tirer exactement les mêmes conclusions avec les suspensions de particules de polypropylène qu'avec les billes de verre de type « sub-sieve ». La



**Figure 4. 14** Évolution des modules élastique et visqueux en fonction de l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve)



**Figure 4. 15** Variation de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve)

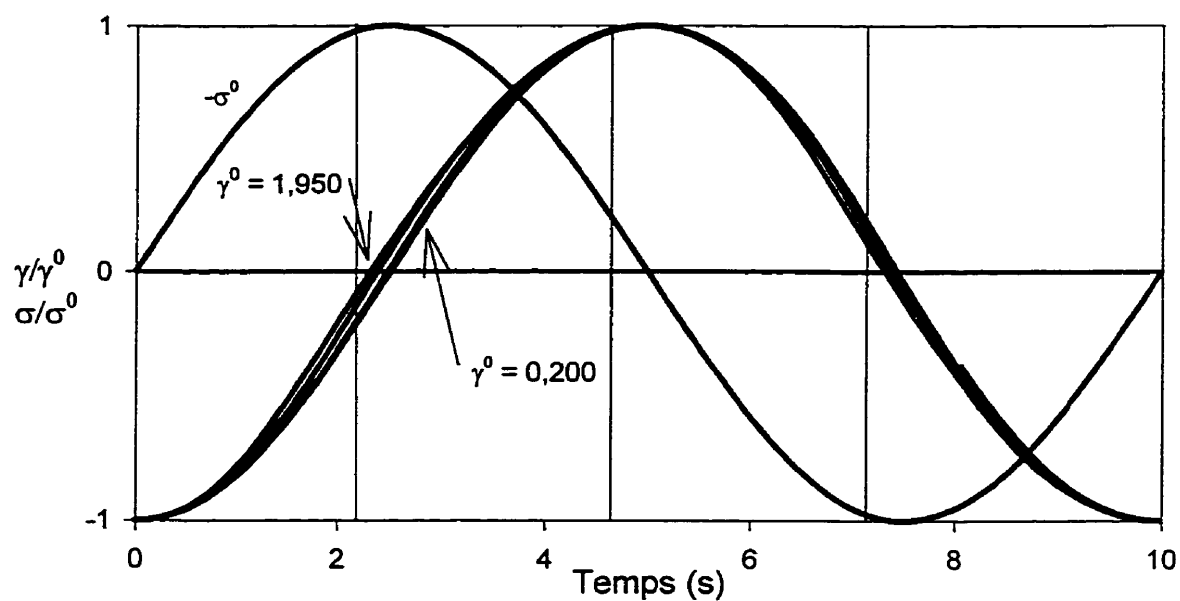


Figure 4.16 Évolution de la forme des signaux de déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve)

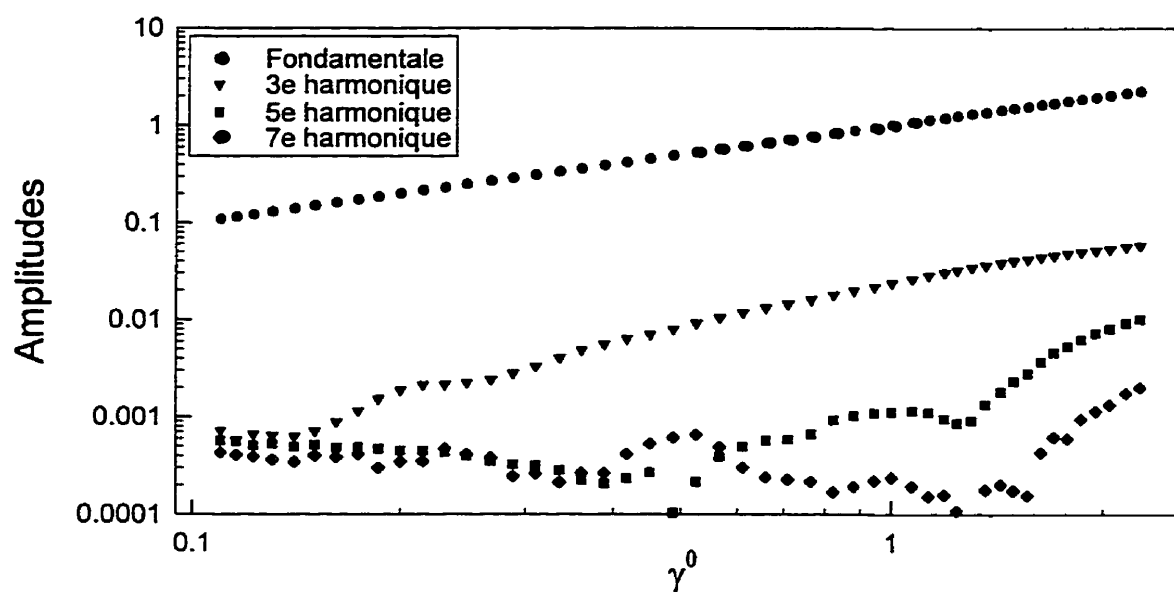
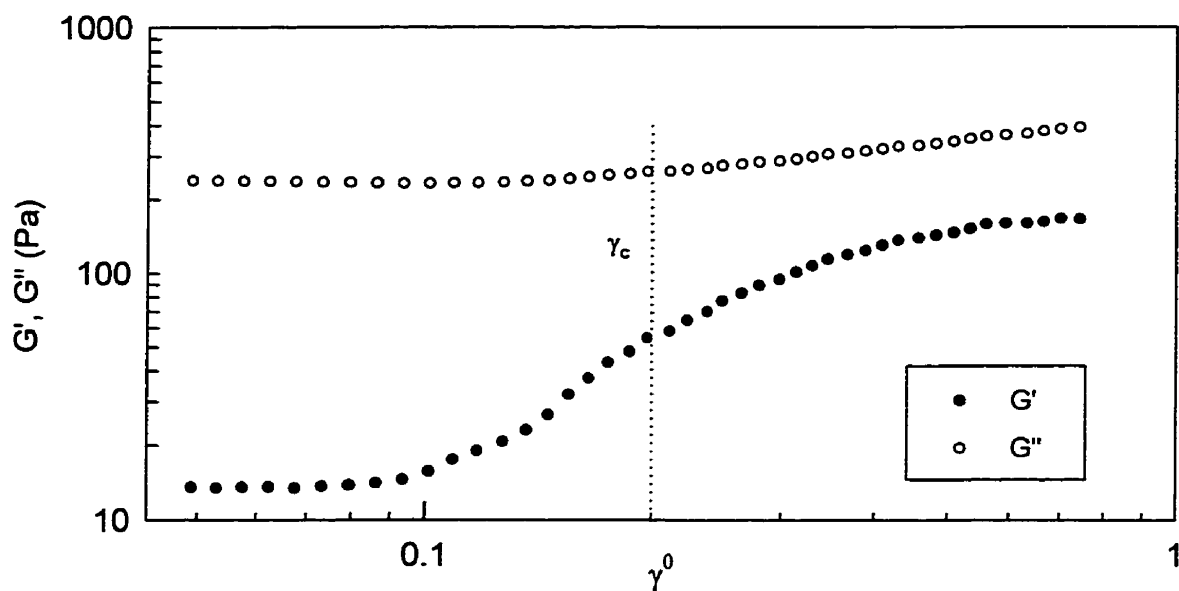
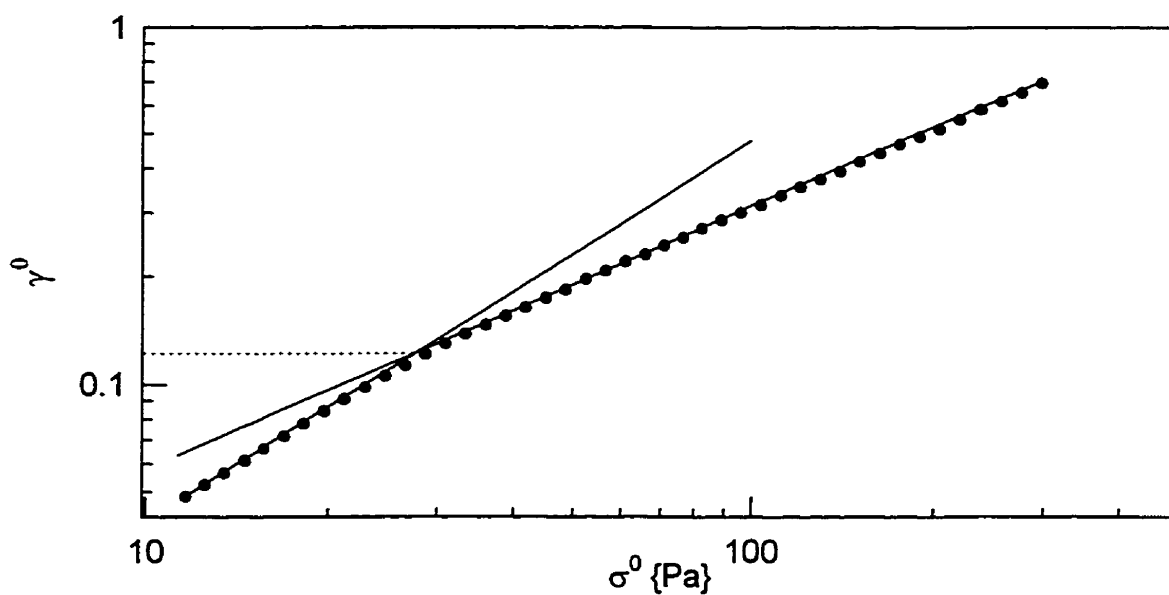


Figure 4.17 Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,25$ , particules : sub-sieve)

figure 4.18 présente l'évolution des modules élastique et visqueux de cette suspension ( $\phi = 0,47$ ) en fonction de l'amplitude de la déformation. En calculant le  $\gamma_c$  de la suspension, on obtient la valeur de 0,20, ce qui est légèrement supérieur à l'amplitude de la déformation où débute l'accroissement du module élastique. Cela peut être dû aux faits que l'échantillon n'a pas été conditionné, que la suspension présente une distribution de taille de particules assez large et que les particules ne sont pas parfaitement sphériques. La figure 4.19 présente le graphique de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte. On y remarque un changement de pente pour une valeur de l'amplitude de la déformation d'environ 0,2, ce qui correspond avec l'amplitude de la déformation à laquelle le module visqueux augmente. La figure 4.20 montre l'évolution de la forme du signal de la déformation pour différentes amplitudes de la déformation et la figure 4.21 montre comment ce changement de forme du signal se répercute sur la composition fréquentielle du signal. On remarque encore une fois que les signaux de déformation sont déformés par rapport à un signal sinusoïdal et cela se reflète également dans la présence de la troisième harmonique.



**Figure 4. 18** Évolution des modules élastique et visqueux en fonction de l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,47$ , particules : polypropylène)



**Figure 4. 19** Variation de l'amplitude de la déformation en fonction de l'amplitude de la contrainte ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,47$ , particules : polypropylène)

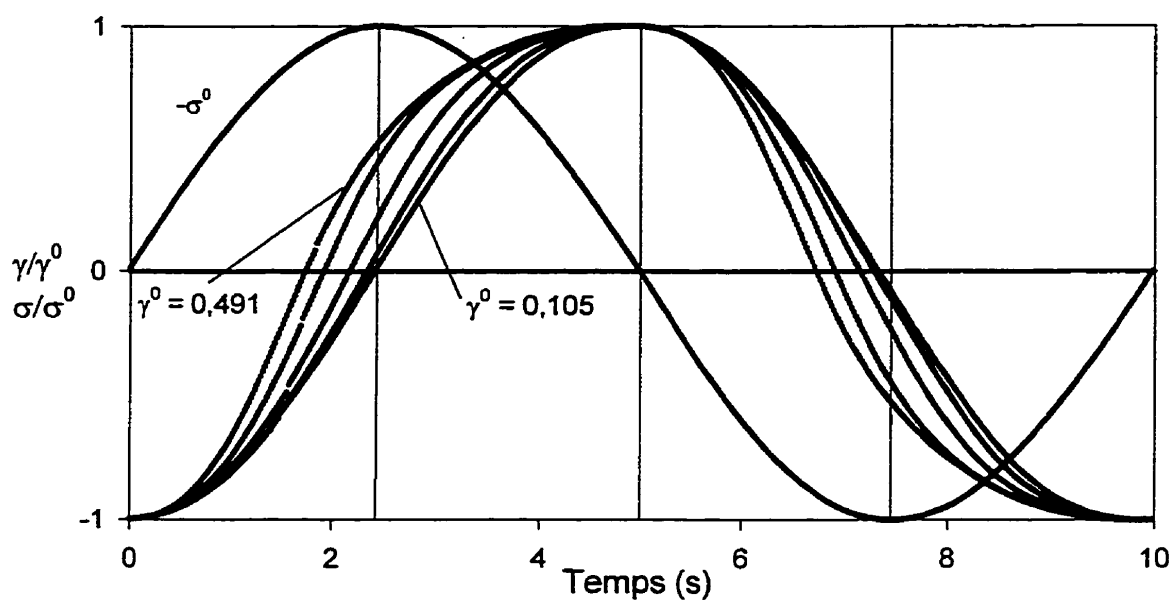


Figure 4. 20 Évolution de la forme des signaux de déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,47$ , particule : polypropylène)

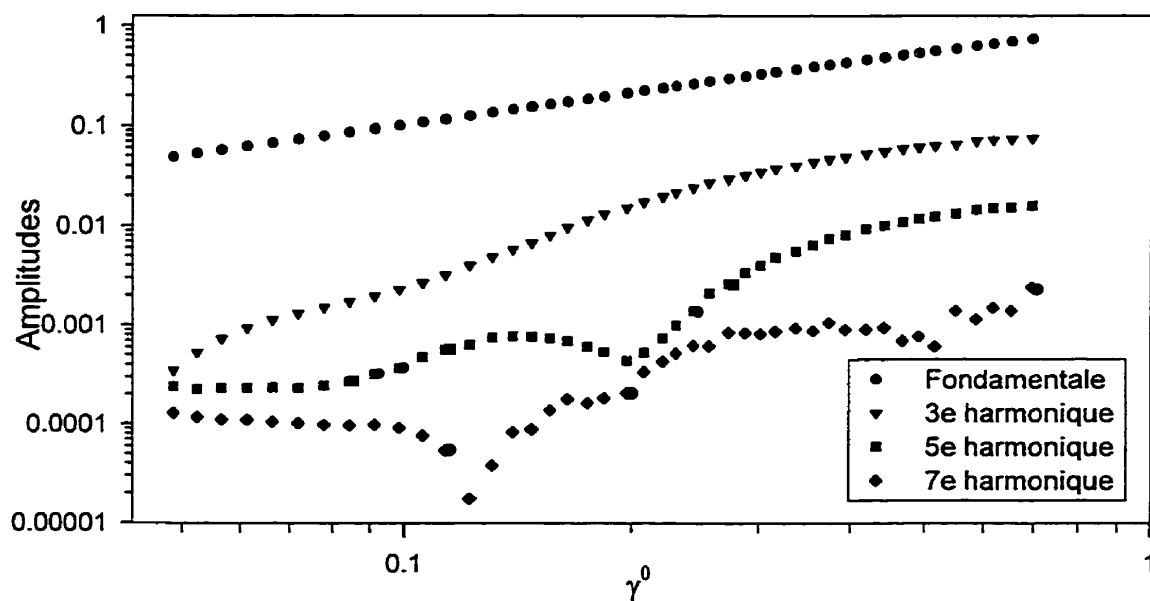


Figure 4. 21 Composition fréquentielle du signal de déformation selon l'amplitude de la déformation ( $\omega = 0,628$  rad/s,  $\phi = 0,47$ , particules : polypropylène)



#### 4.4 Discussion

Lors des essais en dynamique, les suspensions sont soumises à une succession de déplacements qui leur font exécuter un mouvement de va et vient (sinusoïdal). L'amplitude de ce mouvement dépend de l'amplitude de la contrainte qui est appliquée sur l'échantillon. Donc, si on établit un parallèle entre les essais en dynamique et les essais en transitoire, à chaque fois que le déplacement dans une direction produit une déformation de l'échantillon supérieur ou égale à  $\gamma_c$ , tel que calculé au chapitre 3, on devrait observer des indices de la formation de structure dans les suspensions, et c'est effectivement ce qui a été observé.

Lorsque l'on observe les courbes des modules élastique et visqueux en fonction de l'amplitude de la déformation, on remarque tout d'abord, sur les deux modules, une légère diminution dans la région des plus faibles amplitudes de déformation. Pour expliquer ce phénomène, regardons préalablement ce qui se passe durant le conditionnement des échantillons. Le but du conditionnement est de rendre la suspension le plus homogène possible, c'est-à-dire de distribuer les particules de façon la plus uniforme possible pour que la suspension devienne isotrope. Ce conditionnement est équivalent à un essai en dynamique à faible déformation, ce qui veut dire que l'amplitude du mouvement oscillatoire n'est pas très élevée. Dans ce cas là, le mouvement de translation des particules est négligeable, par rapport au déplacement nécessaire à la rencontre de deux particules, mais le cisaillement appliqué induit un mouvement de rotation aux particules. Si une particule est libre de toutes interactions

non hydrodynamiques et de toutes entraves à son mouvement, la vitesse de rotation angulaire de cette particule est égale à la moitié de la vitesse de cisaillement de la suspension au niveau du centre de la particule (Jeffery (1922) et Happel et Brenner (1973)). Ce mouvement de rotation, évidemment oscillatoire, entraîne le fluide entourant la particule. Lorsque deux particules sont assez près l'une de l'autre, deux courants de fluide se rencontrent tel qu'illustré à la figure 3.21a). La rencontre de ces deux courants a pour effet de créer une force de répulsion hydrodynamique entre deux particules. Étendu à l'ensemble de la suspension, ce phénomène a tendance à éloigner les particules les unes des autres, jusqu'à un état d'équilibre, dans toutes les directions, des forces de répulsion, ce qui correspond à une suspension isotrope, c'est-à-dire que l'ensemble des particules sont à des positions équidistantes les unes des autres. La figure 2.3 (présentée au chapitre 2) montre clairement que le conditionnement se produit plus rapidement à fréquences élevées. Cela s'explique par le fait qu'à fréquences plus élevées, pour obtenir une même amplitude de déformation, le même déplacement doit être effectué plus rapidement. Cela implique des vitesses de cisaillement et de rotation plus élevées, induisant de plus forts courants de fluide matrice entre les particules. Les particules se repousseront alors plus fortement, ce qui aura pour effet de faire tendre la suspension vers un état isotrope plus rapidement.

La rencontre des courants induits entre les particules est une des raisons expliquant la forte viscosité des suspensions et son augmentation exponentielle en fonction de la concentration volumique. Lorsque la solution est trop diluée, les particules peuvent être trop éloignées les unes des autres pour subir l'influence des

courants induits par leurs voisines, c'est pourquoi on obtient de meilleurs résultats avec la méthode de conditionnement à concentration volumique élevée. Dans les résultats des essais en dynamique présentés dans la première partie de ce chapitre, on observe une faible diminution des modules élastique et visqueux à de faibles amplitudes de déformation. Ces diminutions sont probablement dues au fait que le conditionnement n'est pas optimal et qu'un effet identique à celui produit par le conditionnement se poursuit durant les essais en dynamique.

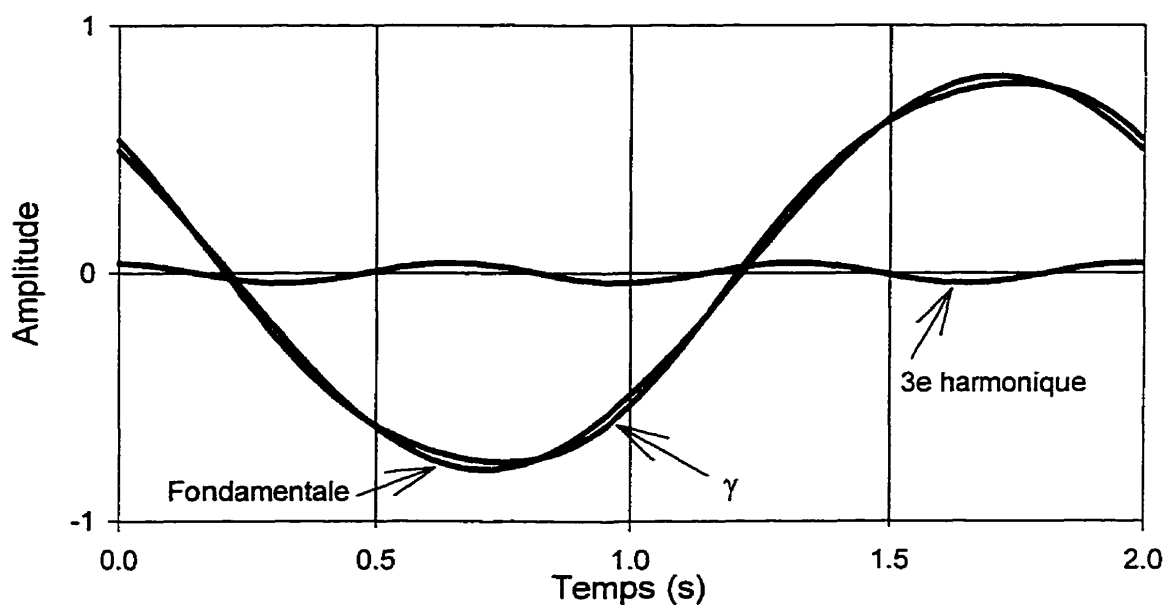
Avec l'augmentation de l'amplitude de la déformation, le module élastique atteint un minimum qui semble se maintenir sur une petite plage d'amplitude de déformation. Dans cette plage, si on se fie aux valeurs de déformation critique calculées au chapitre 3, les particules commencent à entrer en contact et il se crée une structure. Par contre, la majeure partie des particules n'ont pas encore rencontré leurs voisines et continuent à se repousser par les courants de fluide induits par leur rotation. Les deux phénomènes se contrebalancent jusqu'à ce que l'amplitude de la déformation soit suffisante pour que l'effet de la structure soit dominant. C'est alors que se produit l'augmentation importante du module élastique. Au fil des oscillations, la structure est créée dans une direction, puis défaite et ensuite recrée dans l'autre direction, exactement comme dans l'essai à contrainte positive/négative. À chaque légère augmentation de l'amplitude de la déformation, la structure formée comprend un plus grand nombre de particules et affecte de plus en plus le comportement de la suspension. La structure, acquérant de plus en plus de rigidité, nuit d'autant plus aux déplacements de la suspension. Lorsque la structure est bien établie, sa rigidité atteint un niveau tel

que le rapport de l'amplitude de la contrainte sur l'amplitude de la déformation est modifiée, ce qui cause les changements de pentes observés aux figures 4.3 et 4.6. La contrainte appliquée ne parvient plus alors à déformer aussi facilement la suspension après la formation de la structure.

C'est cette augmentation du rapport de l'amplitude de la contrainte sur l'amplitude de la déformation qui est la cause de l'augmentation du module visqueux. Par contre, l'augmentation du module élastique est seulement causée en partie par l'augmentation de ce rapport parce que l'augmentation du module élastique se produit à une amplitude de déformation plus faible que celle où il y a l'augmentation du rapport de l'amplitude de la contrainte sur l'amplitude de la déformation. L'augmentation du module élastique est principalement due à la diminution de l'angle de phase entre les signaux de contrainte et de déformation. Le module visqueux n'est pratiquement pas affecté par la diminution de l'angle de phase parce qu'il est fonction du sinus de l'angle de phase tandis que le module élastique est fonction de son cosinus. Mathématiquement, on peut très bien voir l'effet d'une diminution de l'angle de phase ( $\sin(90^\circ) = 1$ ,  $\sin(80^\circ) = 0,985$ ,  $\cos(90^\circ) = 0$ ,  $\cos(80^\circ) = 0,174$ ). Le module visqueux n'est influencé par la structure que lorsqu'elle est assez établie pour bloquer l'écoulement de la suspension. Par contre, le module élastique ressent l'influence de la structure dès le début de sa formation, à des amplitudes de déformation correspondant aux  $\gamma_c$  calculés au chapitre 3.

La changement de la forme du signal de la déformation est une autre confirmation de la formation de la structure dans les suspensions concentrées et que cela

ce produise à des amplitudes de déformation égales aux  $\gamma_c$ , calculées au chapitre 3, appuie les hypothèses qui y ont été proposées. En se penchant uniquement sur la forme du signal de déformation (pour des amplitudes de déformation supérieures à  $\gamma_c$ ) on se rend compte que le déplacement de la suspension est véritablement bloqué et que cela empêche la trajectoire sinusoïdale d'être effectuée complètement. La figure 4.22 montre l'effet de la troisième harmonique sur le signal de la déformation. Le signal de la déformation est composé de la somme de la fondamentale et de la troisième harmonique et on peut très bien voir que cette dernière a pour effet d'abaisser les sommets du signal.



**Figure 4. 22 Démonstration de l'effet de la troisième harmonique sur les signaux de la déformation ( $\omega = 6,28$  rad/s,  $\phi = 0,50$ ,  $\gamma^0 = 0,765$ , particules : sphéricel)**

Au niveau fréquentiel, c'est donc l'apparition de la troisième harmonique qui nous indique le début de la formation de la structure. L'apparition de la troisième harmonique est associée avec le changement de comportement du module élastique, à une amplitude de déformation égale à  $\gamma_c$ . Cela porte à appuyer l'affirmation de Ganeriwala et Rotz (1987) qui soutiennent que toutes les harmoniques supérieures à la fondamentale sont associées avec l'emmagasinement de l'énergie et que la dissipation de l'énergie est associée uniquement avec la fondamentale.

L'apparition d'un comportement élastique dans la suspension, qui est vraiment relié à la formation de la structure, signifie qu'il y a accumulation d'énergie de façon réversible dans la structure. Bien entendu, comme le montre la valeur nettement supérieure du module visqueux par rapport à celle du module élastique, la majeure partie de l'énergie transmise à la suspension sera évacuée sous forme de chaleur (dissipation visqueuse). L'énergie s'accumule lorsque la structure est créée dans une direction et plus la structure est fortement établie, plus la quantité d'énergie accumulée sera importante. Si la structure accumule de l'énergie de façon élastique, cela veut dire que la structure n'est pas permanente et qu'elle aura une propension à retourner à une structure d'équilibre. La structure devrait libérer cette énergie lorsqu'on cesse de lui imposer un déplacement dans une même direction et cela devrait avoir tendance à diminuer la rigidité de la structure, un peu à la façon d'un ressort. Lorsque l'on arrête ou inverse l'écoulement, on devrait donc observer une manifestation de la libération de cette énergie. Expérimentalement, on l'observe dans les essais de fluage à contrainte positive suivis d'une contrainte négative, tel qu'expliqués au chapitre 3. Dans ces essais,

le fait que la viscosité initiale, à la suite de l'inversion du sens de l'écoulement, est de beaucoup inférieure à la viscosité du second palier en est un indice. En dynamique, il devrait être possible d'observer un indice de la libération d'énergie dans la forme des signaux, mais il est très difficile de dissocier ce phénomène de la diminution de viscosité due au bris de la structure causé par l'inversion du sens de l'écoulement. Idéalement, il faudrait soumettre les suspensions à des essais en relaxation de contrainte (à la suite d'un essai en fluage, stopper brusquement la contrainte et continuer de suivre la déformation de la suspension) pour clairement mettre en évidence ce phénomène, ce qui n'a pas été fait dans ce travail. Par contre, Lavoie (1995) a fait quelques essais en relaxation sur ses suspensions qui ont montré qu'il y avait effectivement des effets de recouvrance de déformation. Malheureusement, ces essais n'ont pas été effectués dans des conditions qui pourraient permettre de conclure, hors de tout doute, que les suspensions libèrent l'énergie accumulée par la structure.

La grande quantité d'énergie emmagasinée de façon réversible, lorsque la déformation devient très importante, pourrait expliquer le phénomène de creusement, observé à la fois lors des essais en transitoire et de ceux en dynamique. Le creusement se produit peut-être parce que la structure a atteint ses limites d'accumulation d'énergie. Ne pouvant pas libérer cette énergie dans la direction opposée à l'écoulement, parce que la contrainte de cisaillement est maintenue, l'énergie est alors libérée dans la seule direction possible, dans la direction radiale de la géométrie plateaux parallèles.

Les résultats des deux essais réalisés avec des particules différentes (billes de verre « sub-sieve » et particules de polypropylène) supportent nos hypothèses sur les

suspensions concentrées. Ces résultats montrent qu'elles peuvent être appliquées à différents types de suspensions de particules sphériques n'ayant que des interactions hydrodynamiques. Les essais réalisés avec la suspension de particules de polypropylène nous montre que la théorie serait valide pour différentes tailles de particules. Ils nous montrent aussi que nos hypothèses seraient aussi valide, peut être avec quelques modifications, pour des suspensions présentant une distribution importante de tailles de particules et même des formes des particules non sphériques.

Avant nous, Gadala-Maria et Acrivos (1980) s'étaient aussi aperçus de la déformation des signaux lors d'essais en dynamique. En comparant les essais en transitoire avec les essais en dynamique, ils établirent un lien direct entre la forme du signal en dynamique et le comportement de la suspension en transitoire. Ils montrèrent que la forme du signal (dans leur cas c'était le signal de la contrainte qui était déformé car ils ont travaillé sur un rhéomètre à déformation imposée) pouvait être prédite par les essais en transitoire. Par contre, l'amplitude des signaux déformés prédite était toujours surévaluée par rapport aux signaux réels. Cela nous apporte un autre élément en faveur de l'hypothèse que le phénomène qui se produit en dynamique est similaire au phénomène qui se produit en transitoire.

Les travaux de Lavoie (1995), qui ont ouvert le chemin à ce projet, montrent un comportement en dynamique, très près de celui que nous avons observé, avec d'autres suspensions. Avec des particules présentant des interactions non hydrodynamiques, quoique faibles, il a obtenu le même type d'accroissement des modules visqueux et élastique en fonction de l'amplitude de la déformation. Il a utilisé des particules de poly



vinyle chloré (PVC), ayant un diamètre de 12  $\mu\text{m}$ , et des particules d'oxyde de titane ( $\text{TiO}_2$ ), ayant un diamètre de 1  $\mu\text{m}$ , en suspension dans le même fluide matrice que celui utilisé dans ce projet, le polybutène, à des fractions volumiques, respectivement, de 0,47 et 0,31. Il a aussi associé le phénomène, à la formation d'une structure induite par cisaillement dans ses suspensions. Il a montré que lorsque la structure est créée, la suspension comporte un seuil de contrainte sous lequel la suspension ne s'écoulerait pas. Par une série d'essais assez originaux, des rampes en contraintes croissantes suivies de rampes en contraintes décroissantes, il a observé que lorsque la contrainte redescendait vers de faibles valeurs, la viscosité de ses suspensions augmentait beaucoup, voir même jusqu'à tendre vers l'infini, ce qui est un comportement typique d'un fluide à seuil de contrainte.

En observant les signaux de déformation présentés aux figures 4.8, 4.16 et 4.20, on peut tirer la même conclusion. Lorsque la contrainte diminue, les sommets des signaux de déformation s'élargissent et deviennent presque horizontaux, ce qui indique que la suspension ne s'écoule pas, ou très peu. Donc si le fluide ne s'écoule pas lorsque soumis à une contrainte de cisaillement, ce comportement peut être associé à celui d'un fluide comportant un seuil d'écoulement en contrainte. Mais, est-ce vraiment un seuil de contrainte ou uniquement une augmentation importante de la viscosité? Les résultats des essais en fluage et en démarrage, semblent indiquer que ce n'est qu'une grande augmentation de la viscosité, mais il est possible que ces essais ont été réalisés à contraintes trop élevées pour faire la distinction entre les deux. Par contre, une suspension très concentrée en bille de verre de type « sphéricel », contenant 60% en

volume de particules, présente un comportement qui est clairement celui d'un fluide à seuil, tellement qu'il nous a été impossible d'effectuer des essais rhéologiques sur cette suspension. Cette suspension a la texture de la pâte à modeler et, si on lui donne une forme quelconque, même après plusieurs mois elle conserve toujours cette forme, signe de l'absence d'écoulement lorsque soumise à des contraintes causées par la force de gravité.

## Conclusion

Dans ce projet, différents essais rhéologiques ont été réalisés pour mettre en évidence le comportement particulier des suspensions concentrées de particules sphériques rigides ne comportant que des interactions hydrodynamiques. Les essais ont été réalisés en fluage, en démarrage et en dynamique. Les résultats de ces différents essais ont permis d'élaborer une théorie phénoménologique du comportement des suspensions concentrées sous l'influence d'un cisaillement.

Il a été démontré que les suspensions concentrées forment une structure lorsqu'elles subissent un cisaillement. La formation de cette structure provoque une augmentation importante de la viscosité de la suspension, qui peut parfois atteindre des valeurs supérieures au double de la viscosité de la suspension à l'état isotrope. Cette structure est due à la rencontre des particules qui, se faisant, se bloquent les unes les autres et se repositionnent de façon à créer un ensemble de particules plus rigide nuisant à l'écoulement de la suspension. Ce phénomène est dû au gradient de vitesse des particules présent dans l'entrefer de l'élément de mesure. Deux particules légèrement décalées, selon un axe dans le sens du gradient de vitesse, ont des vitesses différentes ce qui provoque leur rapprochement et, inévitablement, leur rencontre. À la suite de cette « collision », les particules auront tendance à se repousser, mais en raison de la concentration de la suspension, elles seront bloquées par les particules voisines. C'est donc la rencontre de l'ensemble des particules de la suspension qui forme la structure.

La déformation de la suspension nécessaire à la rencontre de deux particules dépend uniquement de la position relative des particules l'une par rapport à l'autre. Pour une suspension relativement homogène (isotrope), la formation de la structure se produira toujours au même niveau de déformation, et ce indépendamment du taux de cisaillement appliqué à la suspension. Il a été montré qu'il est possible, par une méthode très simple, de prédire la déformation à laquelle débute l'augmentation de la viscosité, la manifestation macroscopique de la formation de la structure.

Il a aussi été montré que la formation de la structure n'est pas aléatoire. La structure créée par cisaillement est orientée dans la direction de l'écoulement de la suspension et peut être détruite en inversant le sens de l'écoulement. La formation de la structure est donc un phénomène réversible. Par contre, la structure obtenue ne semble pas entièrement stable. Lorsque soumis à une déformation trop importante, l'échantillon se creuse et une petite partie de la suspension sort de l'entrefer de l'élément de mesure. Cela peut être vu comme une indication du bris de la structure.

Les essais en dynamique, ont montré l'apparition d'un comportement élastique pour les suspensions concentrées lors de la formation de la structure. Ce phénomène s'accompagne de la modification de la forme du signal de déformation, qui s'éloigne de la forme parfaitement sinusoïdale. L'observation de la forme du signal de déformation, permet de penser que la formation de la structure bloque l'écoulement de la suspension et induit probablement un comportement de type fluide à seuil de contrainte.

Les particules d'une suspension sont soumises à deux types de mouvement lorsqu'elles subissent un cisaillement : un mouvement de rotation et un mouvement de

translation. À de faibles amplitudes de déformation ce sont les effets du mouvement de rotation qui dominent. Cela a pour effet d'induire des courants de fluide matrice autour des particules. Lorsque deux particules sont suffisamment près l'une de l'autre, les courants que leur rotation induit se rencontrent et provoquent des forces de répulsion hydrodynamiques entre les particules. Appliqué à l'ensemble de la suspension, cela tend à rendre la suspension isotrope et à en réduire la viscosité. Lorsque le mouvement de translation est plus important que le mouvement de rotation, pour des amplitudes de déformation relativement élevées, c'est le phénomène d'induction de structure qui se produit dans la suspension.

### **Recommandations**

La poursuite de la recherche devrait s'attacher à répondre aux questions qui ont été soulevées au cours de ce projet, soient : quel est le véritable niveau de viscosité de la structure induite, la suspension après la formation de la structure se comporte-elle comme un fluide à seuil de contrainte d'écoulement et la migration des particules se produit-elle à la suite du bris de la structure ? Par la suite, la recherche pourrait être dirigée vers l'étude du comportement des suspensions comportant des niveaux différents de dimension de particules et vers l'étude des suspensions comportant des interactions non hydrodynamiques ce qui refléterait mieux la réalité des suspensions industrielles.

### Bibliographie

ABBOTT, J. R. et al. (1991). Experimental observations of particule migration in concentrated suspensions : Couette flow, J. Rheol., 35(5), 773-795.

BARNES, H. A. (1989). Shear-thickening (« dilatancy ») in suspensions of nonaggregating solid particles dispersed in newtonian liquids, J. Rheol., 33(2), 329-366.

BIRD, R. B., STEWART, W. E. et LIGHTFOOT, E. N. (1960). Transport phenomena, John Wiley & Son, New York.

CHOW, A. W. et al. (1994). Shear-induced migration in Couette and parallel-plate viscometers : NMR imaging and stress measurements, Phys. Fluids, 6(8), 2561-2576.

COUSSOT, P. et PIAU J.-M. (1993). Techniques de rhéométrie en cisaillement simple dans le cas de dispersions et suspensions concentrées, Les cahiers de rhéologie, 12(1), 1-13.

ECKSTEIN, E. C., BAILEY, D. G. et SHAPIRO, A. H. (1977). Self-diffusion of particules in shear flow of a suspension, J. Fluid Mech., 79(1), 191-208.

FERRY, J. D. (1970). Viscoelastic properties of polymers, John Wiley & Son, New York.

FRANKEL, N. A. et ACRIVOS, A. (1967). On the viscosity of a concentrated suspension of solid spheres, Chem. Eng. Sci., 22, 847-853.

GADALA-MARIA, F. et ACRIVOS, A. (1980). Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres, J. Rheol., 24(6), 799-814.

GANERIWALA, S. N. et ROTZ, C. A. (1987). Fourier transform mechanical analysis for determining the nonlinear viscoelastic properties of polymers, Polymer Eng. Sci., 27(2), 165-178.

HAMPTON, R. E. et al. (1997). Migration of particules undergoing pressure-driven flow in a circular conduit, J. Rheol., 41(3), 621-640.

JEFFERY, G. B. (1922). The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid, Proc. Roy. Soc., A 102, 161-173.

JEFFREY, D. J. et ACRIVOS A. (1976). The rheological properties of suspensions of rigid particles, AIChE Journal, 22(3), 417-432.

KRIEGER, I. M. et DOUGHERTY, T. J. (1959). A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres, Trans. Soc. Rheol., III, 137-152.

LAUN, H. M. et al. (1992). Rheological and small angle neutron scattering investigation of shear-induced particle structures of concentrated polymer dispersions submitted to plane Poiseuille and Couette flow, J. Rheol., 36(4), 743-787.

LAVOIE, P.-A. (1995). Rhéologie de sauces de couchage et autres suspensions modèles, Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal, Montréal.

LEIGHTON, D. et ACRIVOS, A. (1987a). The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions, J. Fluid. Mech., 181, 415-439.

LEIGHTON, D. et ACRIVOS, A. (1987b). Measurement of shear-induced self-diffusion in concentrated suspensions of spheres, J. Fluid. Mech., 177, 109-131.

MARON, S. H. et PIERCE, P. E. (1956). Application of Ree-Eyring generalized flow theory to suspensions of spherical particles, J. Colloid Sci., 11, 80-95.



MARRUCCI, G. et DENN, M. M. (1985). On the viscosity of a concentrated suspension of solid spheres, Rheologica Acta, 24, 317-320.

METZNER, A. B. (1985). Rheology of suspensions in polymeric liquids, J. Rheol., 29(6), 739-775.

MOONEY, M. (1951). The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles, J. Colloid Sci., 6, 162-170.

PHILLIPS, R. J. et al. (1992). A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration, Phys. Fluids A, 4(1), 30-40.

STREMLER, F. G. (1990). Introduction to communication systems, Addison-Wesley Publishing Company, Reading.

TETLOW, N. et al. (1997). Particle migration in a Couette apparatus : Experiment and modeling, J. Rheol., 42(2), 307-327.

THOMAS, D. G. (1965). Transport characteristics of suspension : VIII. A note on the viscosity of newtonian suspensions of uniform spherical particles, J. Colloid Sci., 20, 267-277.

## Annexe A

Deux particules positionnées comme présenté à la figure A.1, allant à des vitesses  $V_1$ , pour la particule 1 et  $V_2$  pour la particule 2, vont se rencontrer au point  $x_c$  et au temps  $t_c$ , tels que définis par les relations suivantes :

$$x_1 = V_1 t \quad (\text{A.1})$$

$$x_2 = V_2 t + L \quad (\text{A.2})$$

où  $L$  est la distance, dans la direction de l'écoulement, séparant les points de contact des deux particules,  $x_1$  est la position frontale de la particule 1 et  $x_2$  est la position arrière de la particule 2.

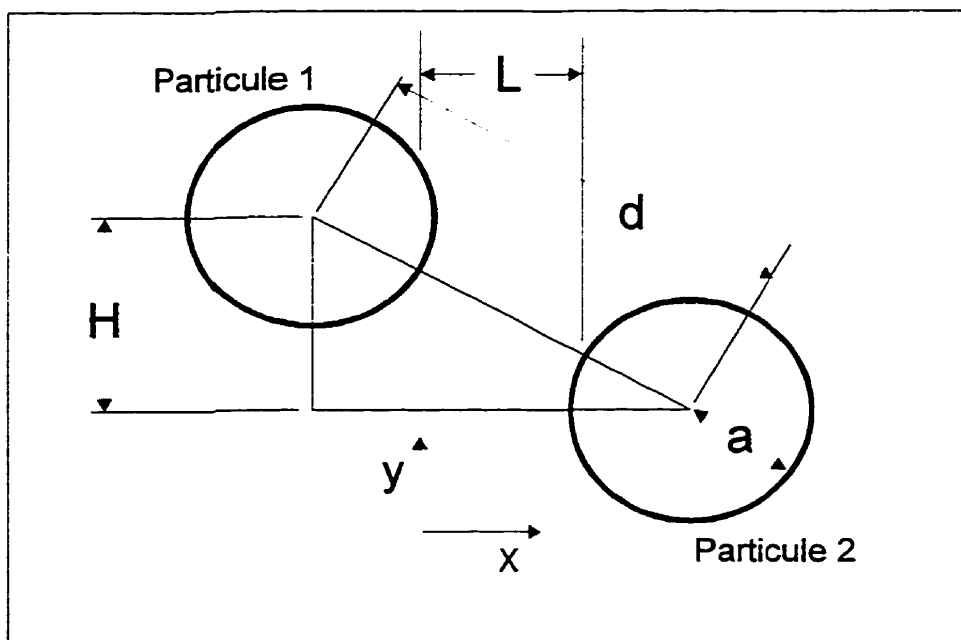


Figure A.1 Arrangement spatial relatif de deux particules dans une suspension

Lorsque  $x_1 = x_2$  on obtient  $x_c$  et  $t_c$  :

$$t_c = \frac{L}{(V_1 - V_2)} \quad (\text{A.3})$$

$$x_c = \frac{V_1 L}{(V_1 - V_2)} \quad (\text{A.4})$$

En sachant que :

$$\dot{\gamma} = \frac{dV}{dy} \quad (\text{A.5})$$

En intégrant on obtient :

$$\int_{Y-H}^Y \dot{\gamma} dy = \int_{V_2}^{V_1} dV \quad (\text{A.6})$$

$$\dot{\gamma} H = V_1 - V_2 \quad (\text{A.7})$$

Puisque

$$V_1 = \dot{\gamma} Y \quad (\text{A.8})$$

l'endroit où les particules se rencontrent n'est pas fonction du taux de cisaillement mais uniquement de la position des particules. Ce n'est que la période de temps nécessaire à cette rencontre qui est fonction du taux de cisaillement.

$$x_c = \frac{Y L}{H} \quad (\text{A.9})$$

$$t_c = \frac{L}{\dot{\gamma} H} \quad (\text{A.10})$$

Il est aussi possible de calculer de façon approximative la déformation à laquelle la rencontre des particules se produira :

$$\gamma_c = \dot{\gamma} t_c \quad (\text{A.11})$$

$$\gamma_c = \frac{(V_1 - V_2)}{H} t_c = \frac{(V_1 - V_2)}{H} \frac{L}{(V_1 - V_2)} = \frac{L}{H} \quad (\text{A.12})$$

Géométriquement, on obtient une approximation de L:

$$L \approx (d - 2a) \cos(\theta) \quad (\text{A.13})$$

$$\sin(\theta) = \frac{H}{d} \quad (\text{A.14})$$

Puisque

$$\sin^2(\theta) + \cos^2(\theta) = 1 \quad (\text{A.15})$$

$$L \approx (d - 2a) \sqrt{1 - \frac{H^2}{d^2}} \quad (\text{A.16})$$

Donc

$$\gamma_c = \frac{(d - 2a) \sqrt{1 - \frac{H^2}{d^2}}}{H} \quad (\text{A.17})$$

## Annexe B

La transformée de Fourier est un outil mathématique qui permet de faire passer un signal du domaine du temps au domaine des fréquences. Elle permet de calculer la valeur de l'amplitude de chaque fréquence comprise dans un signal. Mathématiquement, elle s'exprime de la façon suivante :

$$X(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} x(t) e^{-i\omega t} dt \quad (\text{B.1})$$

En utilisant l'équation d'Euler,

$$e^{-i\theta} = \cos(\theta) - i \sin(\theta) \quad (\text{B.2})$$

elle peut être exprimée de la façon suivante :

$$X(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} x(t) \cos(\omega t) dt - i \int_{-\infty}^{+\infty} x(t) \sin(\omega t) dt \quad (\text{B.3})$$

Pour un signal périodique, l'intégration se fait sur une période uniquement, les bornes d'intégration deviennent donc 0 et T (une période). Le résultat d'une transformée de Fourier est une fonction complexe de  $\omega$ . Pour trouver les amplitudes des fréquences d'un signal, il faut prendre la norme du résultat de la transformée de Fourier. On obtient alors un spectre présentant des «pics» aux valeurs des fréquences présentes dans le signal. L'amplitude de chacune des fréquences, pour des signaux périodiques, est proportionnelle à la hauteur des pics.

$$A(\omega) = \frac{2}{T} |X(\omega)| \quad (\text{pour les signaux périodiques}) \quad (\text{B.4})$$

Les logiciels de calcul des rhéomètres récents utilisent habituellement la transformée de Fourier dans le calcul des modules élastiques et visqueux. Ces modules peuvent être calculés, de la façon suivante.

$$\frac{\int_0^T y(t) \cos(\omega t) dt - i \int_0^T y(t) \sin(\omega t) dt}{\int_0^T x(t) \cos(\omega t) dt - i \int_0^T x(t) \sin(\omega t) dt} = G' + iG'' \quad (\text{B.5})$$

où  $y(t)$  représente le signal de la contrainte,  $x(t)$  le signal de la déformation,  $\omega$  la fréquence et  $T$  la période. En fait, cette équation représente le rapport de la transformée de Fourier du signal de contrainte sur celle du signal de déformation. Parce que les signaux de contrainte et de déformation sont habituellement fournis sous une forme discrète, on doit utiliser une méthode d'intégration numérique pour solutionner l'équation B.5. Par contre, les logiciels de calcul utilisent habituellement l'algorithme de calcul FFT (Fast Fourier Transform), qui minimise le temps de calcul des ordinateurs, pour effectuer la transformée de Fourier sous forme discrète des signaux rhéologiques.

Une copie du code du programme Matlab qui a été utilisé pour calculer les amplitudes des fréquences des signaux fournis par le rhéomètre CSM de Bohlin se retrouve aux pages suivantes. Pour plus d'information sur le sujet de la transformée de Fourier, on suggère au lecteur le livre de Stremmer « Introduction to communication systems » (1990).

```

function freqok(data,signal,num,fo)=result

global result am2 am1 cm1 em1 sig w temps sig2;

n=512;                % Nombre de points
p=512*32;
T=1/(n*fo);           % Période d'échantillonnage
an=n*200;             % Nombre de zéro suivant la fonction

% Conditionnement des signaux

ab=max(signal(:,2));
cont=signal(:,2)./ab.*data(num,10);
cd=max(signal(:,3));
ef=min(signal(:,3));
gh=(cd+ef)/2;
defl=signal(:,3)-gh;
ij=max(defl);
def=defl./ij.*data(num,9);

y=def;
y(n+1:2*n)=def;
yy=y;
yy(2*n+1:4*n)=y;
z=yy;
z(4*n+1:8*n)=yy;
zz=z;
zz(8*n+1:16*n)=z;
zzz=zz;
zzz(16*n+1:32*n)=zz;

vt=zeros(1,an);
vt(1:p)=zzz(1:p);

figure(1)
Subplot(211);
plot([0:511]/512*2*pi,def([1:512]),',',[0:511]/512*2*pi,cont([1:512]),',');
title('Signal');xlabel('rad');ylabel('Contrainte (Pa s) et déformation')

```

% Transformée de Fourier

```
vn=(fft(vt));
vk=abs(1/p*vn);           % Module
```

```
fre=[0:1500]/(an*T);
amp=vk([1:1500+1])*2;
```

```
subplot(212);
plot(fre,amp,'.');
title('Composition fréquentielle');xlabel('f (Hz)');grid;
```

```
harmoni=[vk(201) vk(401) vk(601) vk(801) vk(1001) vk(1201) vk(1401) vk(1601)
vk(1801) vk(2001)];
```

```
ampli=harmoni.*2;
```

% Calcul des modules

```
A=0;
B=0;
C=0;
D=0;
```

```
d=2*pi/n;
for t=1:n; % de t0 à tn-1
```

```
    a0(t)=cont(t)*cos(d*t);
    a1(t)=cont(t)*sin(d*t);
    b0(t)=def(t)*cos(d*t);
    b1(t)=def(t)*sin(d*t);
```

```
end;
for t=1:n-1;
```

```
    b=(a1(t)+a1(t+1))/2;
    B=b+B;
```

```
    a=(a0(t)+a0(t+1))/2;
    A=a+A;
```

```
    e=(b1(t)+b1(t+1))/2;
    D=e+D;
```



```

f=(b0(t)+b0(t+1))/2;
C=f+C;

end;

Re=(A*C+B*D)/(C^2+D^2);
Im=(A*D-B*C)/(C^2+D^2);

G1=data(num,10)/(vk(201)*2)*cos(data(num,4)/360*2*pi);
G2=data(num,10)/(vk(201)*2)*sin(data(num,4)/360*2*pi);

G3=data(num,10)/(data(num,9))*cos(data(num,4)/360*2*pi);
G4=data(num,10)/(data(num,9))*sin(data(num,4)/360*2*pi);

mod=[Re,Im,G1,G2,data(num,7),data(num,8),G3,G4];

%Calcul des angles de phase

am1=ampli(1,1);
cm1=ampli(1,3);
em1=ampli(1,5);
am2=data(num,10);
sig=def;
sig=sig';
sig2=cont;
sig2=sig2';

w=2*pi*fo;          % fréquence angulaire

temps=(0:511)/(512*fo);

teta=fmins('fitc',[-pi -pi -pi])
g=fmins('fita',[am2+5 -2*pi])

if g(1) < 0
    g(1)=-g(1)
    g(2)=g(2)+pi
end

bm1=teta(1);
dm1=teta(2);

```

```

fm1=teta(3);
bm2=g(2);

defh=am1*cos(w*temps+bm1)+cm1*cos(3*w*temps+dm1)+em1*cos(5*w*temps+fm
1);

figure(2)
Subplot(211);
plot(temps,[sig' defh'])

conth=am2*cos(w*temps+bm2);

Subplot(212);
plot(temps,[sig2' conth'])

% Sauvegarde des resultats

result=[data(num,9) data(num,10) mod g bm1 dm1 fm1 ampli]

load detail.txt;
trav=detail;
trav(num,:)=result;
save detail.txt trav -ascii

load signal.txt;
prav=signal;
compt=(num-1)*2+1;
prav(compt,:)=def;
prav(compt+1,:)=cont;
save signal.txt prav -ascii

```

```
% fonction fita
```

```
function f=fit(x)
global aml sig2 w temps
```

```
d2=(sig2-(x(1)*cos(w*temps+x(2))))).^2;
f=sum(d2);
```

```
% fonction fitc
```

```
function f=fit(x)
global aml cm1 em1 sig w temps
```

```
b1=x(1);d1=x(2);e1=x(3);
```

```
d=(sig(1,:)-
(aml*cos(w*temps+b1)+cm1*cos(3*w*temps+d1)+em1*cos(5*w*temps+e1))).^2;
f=sum(d);
```