

ISSN 1149 - 0039

Les Cahiers de Rhéologie



Volume XII, Numéro 4

Janvier 1995

Edités par :

Le Groupe Français de Rhéologie

Les Cahiers de Rhéologie



GRUPE FRANCAIS DE RHEOLOGIE

Président : J-M. PIAU

Trésorier : J-F. TASSIN

Secrétaire : J. BOUTON

SOCIETE RHEO
99 route de Versailles
91160 CHAMPLAN
Tél. (1) 64 54 01 01
Fax. (1) 64 54 01 87

SOUSCRIPTION AUX CAHIERS ET ABONNEMENTS

Les Cahiers paraissent deux à trois fois par an.

Les membres du G.F.R. les reçoivent gratuitement.

Les non membres peuvent obtenir les numéros des Cahiers en s'adressant au Secrétariat du Groupe moyennant une participation au frais.

"Les articles sont publiés sous la responsabilité de leur (s) auteur (s)"

Les Cahiers de Rhéologie

**SOMMAIRE DU VOLUME XII, n° 4
JANVIER 1995**

ARTICLES

- **COMPORTEMENT RHEOLOGIQUE STATIONNAIRE D'UNE DISPERSION CONCENTRÉE DE SILICE-BENTONITE : MODÉLISATION ET ASPECTS PRÉDICTIFS p. 119**

Patricia BERTHIER et Patrice FLAUD

Laboratoire de Biorhéologie et d'hydrodynamique physico-chimique

URA CNRS 343

Université Denis Diderot

2 Place Jussieu - 75005 PARIS

- **RHEOLOGIE DES FLUIDES A SEUIL, CAS DU GEL DE SILICE p. 129**

C. LANOS, ATER et A. DOUSTENS, Maître de Conférences

Laboratoire GTMa, INSA de Rennes

20 av. des Buttes de Coësmes

35043 RENNES cedex

COMPORTEMENT RHEOLOGIQUE STATIONNAIRE D'UNE DISPERSION CONCENTREE DE SILICE-BENTONITE: MODELISATION ET ASPECTS PREDICTIFS

Patricia BERTHIER Patrice FLAUD

Laboratoire de Biorhéologie et d'hydrodynamique physico-chimique
URA CNRS 343 et Université Denis Diderot 2 Place Jussieu 75005 PARIS

RESUME

Une caractérisation du comportement rhéologique en régime stationnaire de suspensions biphasiques de bentonite contenant des particules de silice a été effectuée. Cette étude fait appel à un modèle semi-phénoménologique introduisant une viscosité qui tient compte des changements structuraux du matériau. Il a été possible d'obtenir des relations simples entre les paramètres de ce modèle et les concentrations en solide (bentonite, silice). Le choix de la phase continue est apparue essentielle pour cette modélisation. La prédiction du comportement rhéologique en régime permanent ainsi que l'évaluation indirecte des concentrations ont ainsi pu être obtenues.

ABSTRACT

The static rheological properties of biphasic (bentonite-silica) suspensions are modelised using a structural model. Assuming that the dispersive medium is the Newtonian one, the knowledge of the weight fraction of both bentonite and silica give a good prediction of the rheological behaviour. Reciprocally the knowledge of the rheological properties of the material allows to determine indirectly the weight fractions of the two solids

I - INTRODUCTION

La caractérisation rhéologique de fluides composés de deux phases solides est un problème rhéologique complexe qui ne peut être abordé qu'à partir des travaux relatifs à des situations plus simples. Dans ce sens la caractérisation du comportement newtonien de dispersions concentrées reste un point de base de ces différents travaux: Parallèlement aux travaux d'Einstein, de Vand (1948), de Brinkman (1952), puis de Batchelor (1977) concernant l'étude des suspensions semi diluées, Mooney (1951) introduit, pour les milieux concentrés, le concept de milieux effectifs en considérant une suspension donnée comme un milieu continu dans lequel d'autres particules de même nature ont été dispersées. Reprise par d'autres auteurs tels que Krieger (1963), cette approche a été développée par la suite.

L'étude du comportement non newtonien de ces dispersions est marquée, parmi bien d'autres, par les noms de Ree et Eyring (1955), Maron et Pierce (1956), Krieger et Dougherty (1959) et Quemada (1977).

La prise en compte de la polydispersité a été également largement étudiée tant expérimentalement que théoriquement, essentiellement pour des systèmes de sphères dures (Mooney (1951), Farris (1968), Ouchiyama et Tanaka (1984), Poslinski (1988)). Mais elle reste peu étudiée pour des systèmes complexes à plusieurs composants tels que les latex carbonates (Talbi 1993), ou les dispersions de silice bentonite (Berthier 1993). Dans ce cas, le

concept de viscosité structurale a été utilisé pour analyser le comportement rhéologique de ces suspensions.

Le choix d'une phase continue adéquate doit alors être effectué afin d'ajuster le modèle aux données expérimentales. Il est alors possible d'évaluer les concentrations des différentes fractions massiques a partir du comportement rhéologique du fluide ou réciproquement de prédire le comportement rhéologique de ces fluides pour des concentrations données.

II DISPERSIONS DE SILICE OU DE BENTONITE.

II a Approche théorique

La plupart des modèles qui décrivent le comportement rhéologique des milieux dispersés incluent explicitement la dépendance en fonction de la fraction volumique de la phase dispersée. Celui développé par D. Quemada est fondé sur un principe de dissipation minimale d'énergie. Il incorpore un paramètre lié à l'état structural du milieu, et permet d'écrire la viscosité relative sous la forme:

$$\mu_r = \frac{\mu}{\mu_s} = \left(1 - \frac{k\dot{\gamma}}{2}\right)^{-2} \quad (1)$$

où

μ_r est la viscosité relative, μ_s la viscosité de la suspension, μ la viscosité de la phase continue, $k = k(\phi, \dot{\gamma})$ le facteur de structure (ou viscosité intrinsèque), et ϕ est la fraction volumique.

En posant $\phi_p = 2/k$, qui représente la fraction volumique de packing effective pour laquelle $\mu_r \rightarrow \infty$, on peut généraliser (1) en supposant que ϕ_p est à la fois fonction de la fraction volumique et de la vitesse de cisaillement. Le modèle permet alors de décrire un comportement non newtonien relié à l'existence d'unités structurales. L'étude de leur évolution selon une cinétique simple limitée à la diffusion brownienne pour les processus du type agrégation, et à l'action des forces hydrodynamiques pour les ruptures, conduit à une dépendance de ϕ_p , donc de k , du type $\phi_p = \phi_p(\phi, \dot{\gamma}_c)$ où $\dot{\gamma}_c = t_c \dot{\gamma}$. t_c est un temps caractéristique permettant, à l'aide d'une équation cinétique de déduire l'évolution des unités structurales entre l'état structuré, et l'état déstructuré. La dépendance explicite de k en fonction de la vitesse de cisaillement s'écrit alors:

$$k = \frac{k_0 + k_\infty (t_c \dot{\gamma})^{1/2}}{1 + (t_c \dot{\gamma})^{1/2}} \quad (2)$$

où k_0 et k_∞ sont respectivement les facteurs de structure à basse et à forte vitesse de cisaillement, et qui sont reliés à la viscosité relative au repos μ_{r0} ou à forte vitesse de cisaillement $\mu_{r\infty}$ par la relation:

$$k_{0,\infty} = \frac{2}{\phi} (1 - \mu_{r0,\infty}^{-1/2}) \quad (3)$$

Afin de prendre en compte l'existence éventuelle d'une contrainte seuil τ_v , une généralisation phénoménologique du modèle est effectuée qui conduit à la relation

$$\begin{aligned} \tau &= \tau_y + \mu(\phi, \dot{\gamma}) \dot{\gamma} & \tau > \tau_y \\ \dot{\gamma} &= 0 & \tau < \tau_y \end{aligned} \quad (4)$$

où $\mu(\phi, \dot{\gamma})$ est donnée par les expressions 1 et 2.

C'est ce modèle que l'on utilisera pour caractériser le comportement rhéologique des dispersions de silice ou de bentonite; On cherchera à déterminer les valeurs des paramètres k_0, k_∞, t_c et τ_y à partir des données de rhéologie stationnaire et à utiliser ces données pour valider un modèle décrivant le comportement rhéologique d'une dispersion de silice-bentonite. Ce modèle sera décrit plus loin.

IIb Résultats expérimentaux

Protocole expérimental

Les mesures rhéologiques des suspensions ont été effectuées en utilisant un viscosimètre de type Couette à vitesse de cisaillement imposée (le Bolhin Vor). La gamme de vitesse de cisaillement imposée est de 0.08 à 1600 s^{-1} . L'échantillon est soumis, à température contrôlée, à des vitesses de cisaillement croissantes et décroissantes pendant un cycle de 8 mn. Les matériaux étant thixotropes, les réponses en contrainte, pendant les premiers cycles de sollicitation ne se correspondent pas, et forment des boucles d'hystérèse (Figure n°1). Les données que l'on retiendra pour être analysées par le modèle correspondent au quatrième cycle où la courbe à vitesse de cisaillement croissante se confond pratiquement avec la courbe à vitesse de cisaillement décroissante. Nous supposons qu'elle représente le comportement du matériau dans l'état stationnaire.

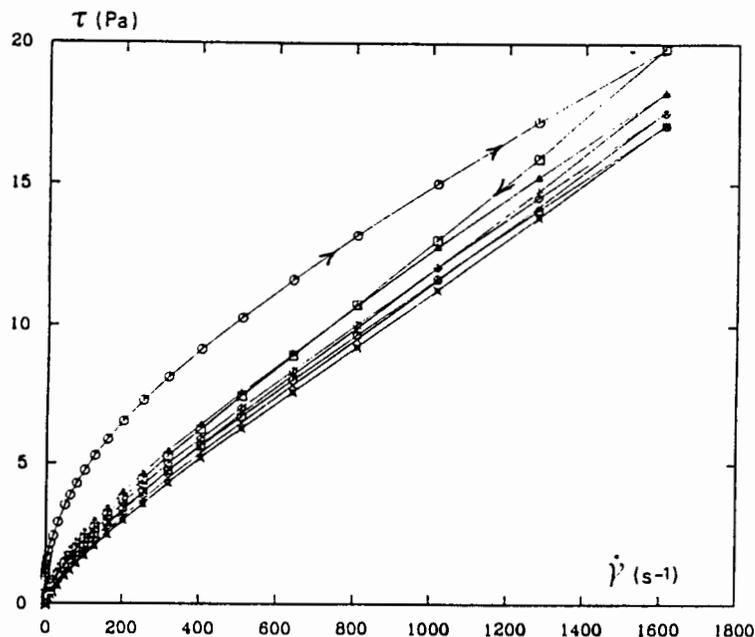


Figure 1

Evolution temporelle des rhéogrammes (Contrainte-Vitesse de cisaillement) pour des suspensions de bentonite (4% massique)

On a cherché ici à caractériser le comportement du matériau à l'aide d'équations simples reliant les paramètres k_0, k_∞, t_c et τ_y à la concentration en silice ou en bentonite. C'est donc

une analyse séparée du comportement stationnaire des dispersions de silice puis de bentonite qui est effectuée. C'est en fonction de la concentration massique que nous avons analysé les données expérimentales, cette fraction étant en effet la seule mesurable. Dans le modèle c'est la fraction volumique effective qui est utilisée, l'introduction de la fraction massique se traduira donc par une modification de la signification et des valeurs obtenues pour les paramètres k_0, k_∞ , les paramètres τ_c et τ_v restant inchangés. Seuls en effet interviennent les produits de type $k\phi$ dans le modèle.

Caractérisation rhéologique de la suspension de silice

Les particules de silice utilisées sont des particules dont la taille moyenne est de $10\mu\text{m}$. L'étude expérimentale du comportement rhéologique d'une suspension de silice dans un fluide newtonien a nécessité la réalisation d'une phase suspendante plus dense que l'eau (solution de chlorure de zinc) afin de limiter considérablement les phénomènes de sédimentation pendant la durée de la mesure. On démontre ainsi que la viscosité relative reste bien indépendante de la viscosité du fluide suspendant et de la concentration en chlorure de zinc. En extrapolant à concentration de chlorure de zinc nulle, on montre alors que les suspensions de silice dans l'eau, présentent un caractère newtonien. La viscosité en fonction de la concentration massique de silice est représentée sur la figure n°2. Elle peut être modélisée avec l'équation (1), ou k reste indépendant de ϕ et de $\dot{\gamma}$ et a pour valeur $k=3.45$.

$$\mu_r = \left(1 - \frac{k\phi_s}{2}\right)^{-2} \quad (5)$$

dans cette équation, ϕ_s est la fonction massique de silice. La fraction de packing, valeur de la concentration massique à partir de laquelle la viscosité atteint des valeurs infinies est de 0,579.

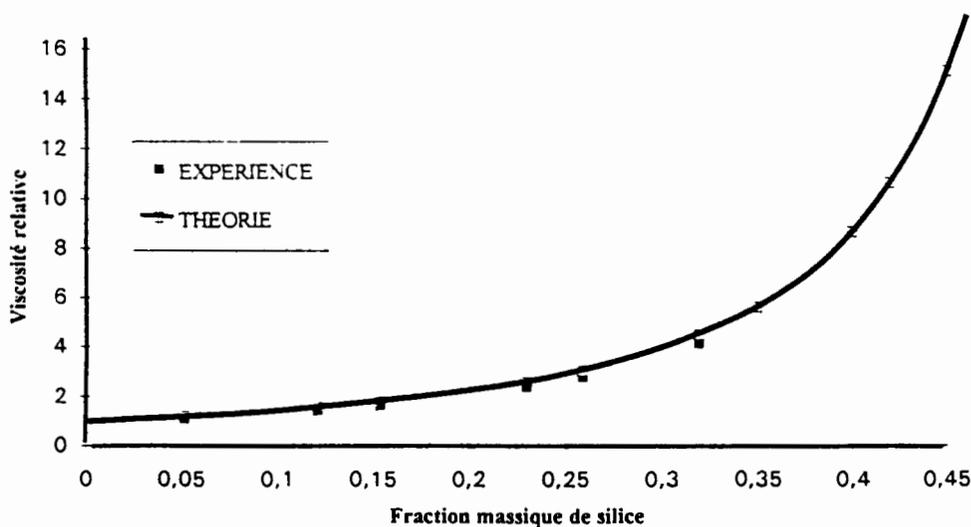


Figure 2

Variation de la viscosité relative d'une dispersion de silice en fonction de la fraction massique ϕ_s

Caractérisation rhéologique de la suspension de bentonite.

Les suspensions de bentonite présentent un comportement non newtonien et possèdent une contrainte seuil. Le modèle permet de rendre compte de manière très précise des résultats expérimentaux. La figure 3 représente les viscosités relatives de ces suspensions en fonction de la vitesse de cisaillement. La détermination des paramètres (k_0, k_∞, t_c) est précise si ces courbes sont connues complètement (caractérisation des plateaux à faible et forte vitesse de cisaillement). Dans la plupart des cas il n'est pas possible d'accéder expérimentalement à ces domaines de cisaillement, et la précision sur la détermination des paramètres est dépendante de la caractérisation de ces plateaux. Dans le cas présent le plateau à forte vitesse de cisaillement est bien déterminé alors qu'à faible vitesse de cisaillement on n'a pas encore atteint le domaine newtonien. En tenant compte des erreurs introduites sur ces paramètres et sur le temps critique, fixé par la position de la zone de transition entre les deux plateaux newtoniens, on a pu prendre pour ce paramètre t_c une valeur constante et égale à $11 \cdot 10^{-3}$ s.

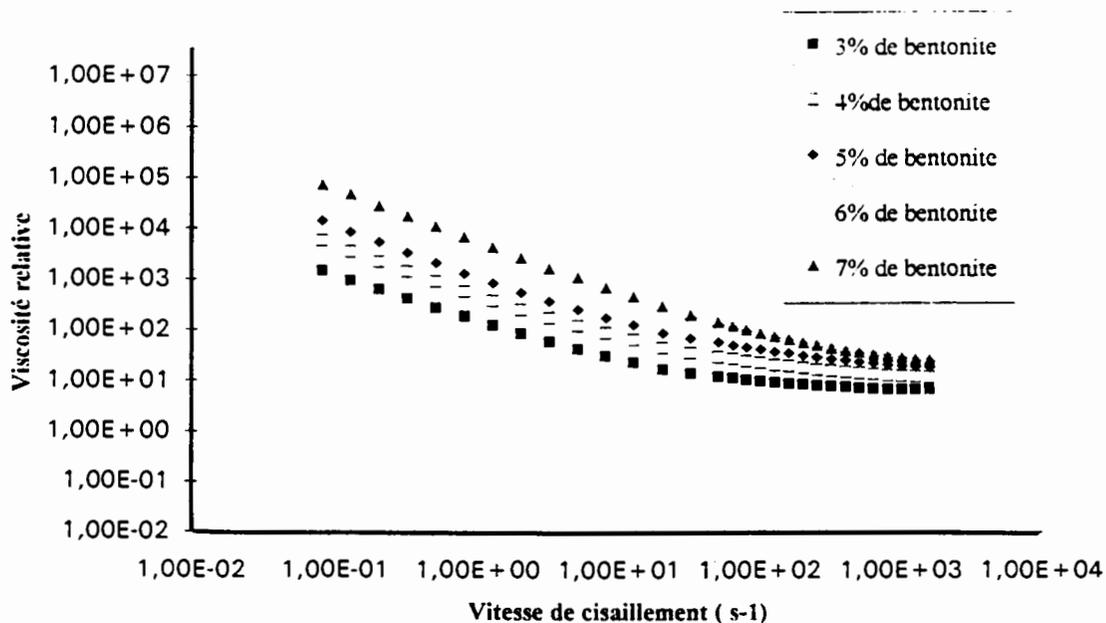


Figure 3

Viscosité relative de suspensions de bentonite dans l'eau à différentes fractions massique de bentonite

Les facteurs de structure massique k_0 et k_∞ dépendent quant à eux fortement de la fraction massique de bentonite ϕ_b . On trouve que l'inverse de ces facteurs varie linéairement en fonction de cette concentration:

$$\frac{1}{k_0} = 0,485\phi_b + 0,001 \quad \text{et} \quad \frac{1}{k_\infty} = 0,559\phi_b + 0,007 \quad (6)$$

Enfin, la contrainte seuil peut être représentée par la loi de type exponentiel en ϕ_b :

$$\ln \tau_y = 12,57 + 4,17 \ln \phi_b \quad (7)$$

Cette modélisation simple des paramètres du modèle en fonction de la fraction massique de bentonite nous fournit un moyen aisé pour prédire le comportement rhéologique de telles suspensions connaissant la fraction massique de la phase dispersée.

Reciproquement, en connaissant la viscosité relative à forte vitesse de cisaillement d'une telle suspension, (donc d'après l'équation (3), le facteur de structure massique k_∞), la fraction

massique de bentonite peut être déterminée. La mesure du plateau de viscosité à forte vitesse de cisaillement étant possible, k_{∞} est évalué avec assez de précision pour permettre la détermination de ϕ_b à $\pm 5\%$ (malgré la prise en compte d'une valeur constante pour le temps caractéristique t_c). En outre l'erreur sur la détermination de la contrainte seuil joue peu sur les mesures effectuées à forte vitesse de cisaillement et dans des gammes de contraintes élevées par rapport à cette contrainte seuil. Les erreurs sur la détermination de la concentration sont de ce fait très faibles.

III DISPERSION DE SILICE-BENTONITE

Une caractérisation des dispersions biphasiques (bentonite silice) a ensuite été étudiée. Nous sommes ici en présence d'une suspension composée de deux dispersions de type différent: une suspension newtonienne (suspension de silice) et une suspension non newtonienne (suspension de bentonite). La caractérisation rhéologique de ces suspensions biphasiques impose le choix d'une phase continue et d'une phase dispersée afin d'ajuster le modèle utilisé sur la viscosité relative. Cette viscosité relative définie comme étant la viscosité totale divisée par la viscosité de la phase suspendante à même vitesse de cisaillement pourra donc s'exprimer de deux manières selon le choix de la phase suspendante. Nous avons vu précédemment que les suspensions de silice et des suspensions de bentonite dans une phase aqueuse (donc newtonienne), obéissaient à la loi de viscosité utilisée. En est-il de même pour une suspension de silice dans une phase concentrée non newtonienne (bentonite) et pour une suspension de bentonite dans une phase concentrée newtonienne (silice).

IIIa Etude d'une dispersion de silice dans un milieu suspendant de bentonite

La figure 4 représente les viscosités relatives en fonction de la vitesse de cisaillement, de suspensions de silice dans des dispersions de bentonite à différentes fractions massiques.

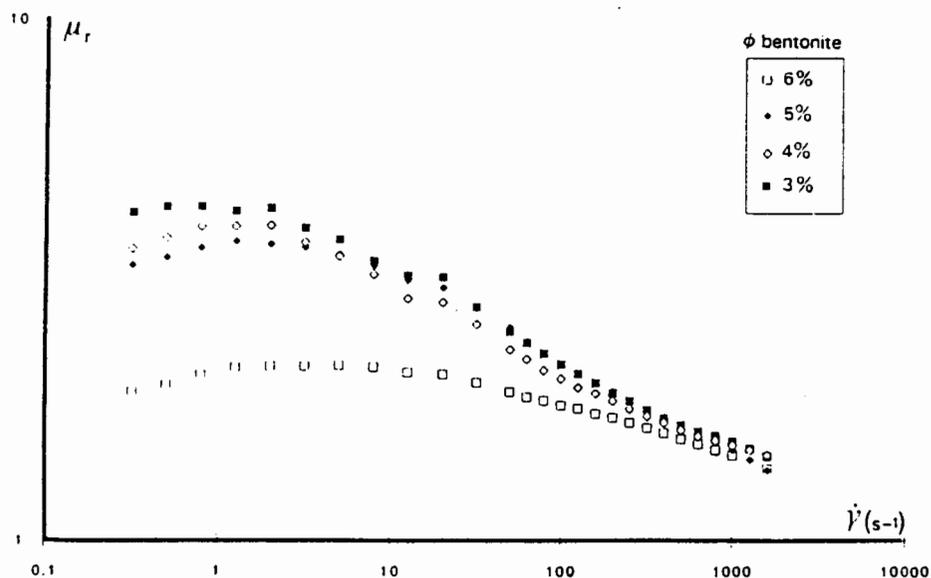


Figure 4

Viscosité relative d'une suspension de silice dans une dispersion de bentonite à 5% de fraction massique de silice ϕ_s et pour différentes fractions massique de bentonite ϕ_b

On peut observer un comportement dilatant à faible vitesse de cisaillement et un comportement rhéofluidifiant quand la vitesse de cisaillement augmente. Le modèle de Quémada peut décrire soit un comportement rhéofluidifiant soit un comportement dilatant mais non les deux à la fois. Il n'est donc pas possible dans ce cas d'étudier l'aspect prédictif du comportement rhéologique et de quantifier les différentes fractions solides contenues dans ces suspensions.

Par ailleurs, la concentration de la phase bentonitique influence fortement la comportement de la viscosité relative et de ce fait, semble démontrer l'existence d'interaction bentonite-silice. La structure de la phase suspendante ne semble pas être une structure homogène et continue car les particules de bentonite peuvent constituer des unités structurales de taille plus importantes que celle des particules de silice. On cherche donc à étudier ce système comme une suspension de bentonite dans une suspension de silice, phase suspendante newtonienne supposée homogène par rapport aux agrégats de bentonite.

IIIb Etude d'une suspension de bentonite dans un milieu suspendant de silice

Connaissant les caractéristiques de la suspension de silice, il est aisé de calculer la viscosité relative permettant de calculer les paramètres du modèle. On cherche donc à caractériser le comportement d'une série de suspensions concentrées de bentonite dans un milieu de viscosité newtonienne connue.

La figure n°5 représente les variations de la viscosité relative de suspensions de bentonite dans différentes suspensions de silice. Il est alors possible de modéliser la dépendance des paramètres τ_y , k_0 , k_∞ , t_c en fonction des fractions massiques de silice et de bentonite:

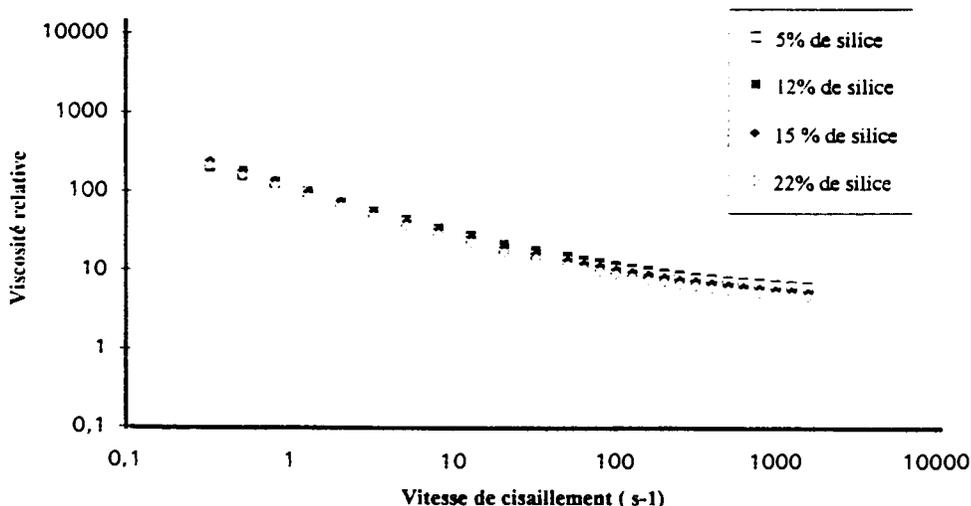


Figure 5

Viscosité relative d'une suspension de bentonite (3% massique) dans différentes dispersions de silice (dont la fraction massique ϕ_s varie de 5 à 22%)

Ces dispersions possèdent une contrainte seuil qui peut s'écrire en fonction de la concentration de silice et de celle de la bentonite de la manière suivante :

$$\tau_v = \exp(a + b\phi_s)\phi_b^c \quad (8)$$

ou ϕ_s est la fraction massique de silice, et ϕ_b la fraction massique de bentonite. et où les paramètres a, b, c ont pour valeur $a = 13.23$; $b = 10.1$; $c = 4.4$

Le temps caractéristique apparaît comme une fonction décroissante de la fraction massique de bentonite quelle que soit la concentration en silice. Une équation du troisième degré permet de modéliser le temps caractéristique en fonction de ϕ_b

$$t_c = 0.098 - 3.32 \phi_b + 38.2 \phi_b^2 - 146 \phi_b^3 \quad (9)$$

Pour une concentration donnée de silice, nous obtenons des relations simples permettant d'exprimer la dépendance des facteurs de structure en fonction de ϕ_b , qui peuvent se mettre sous la forme.

$$\begin{aligned} \frac{1}{k_x} &= A_1(\phi_s)\phi_b + B_1(\phi_s) \\ \frac{1}{k_0} &= A_2(\phi_s)\phi_b + B_2(\phi_s) \end{aligned} \quad (10)$$

Le domaine de validité de cette expression est limité aux valeurs de fraction massique de bentonite inférieures à 8%. Les valeurs de A_1, A_2, B_1 et B_2 sont regroupés dans le tableau ci-dessous, qui met en évidence leur dépendance en fonction de la fraction massique de la silice.

ϕ_s	0 %	5 %	12 %	15 %	22 %	25%	31%
A1	0,559	0,53	0,55	0,5	NON LINEAIRE		
B1	0,007	0,011	0,009	0,01			
A2	0,485	0,497	0,492	0,5	0,508	0,648	0,495
B2	0,001	0,0006	0,0006	0,0002	$8 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-4}$

Quand la concentration de la phase suspendante augmente la linéarité de la dépendance des facteurs de structure à forte vitesse de cisaillement n'est plus respectée.

Au delà d'une valeur de la fraction massique de silice égale à 22%, il ne sera plus possible d'utiliser ces résultats à des fins prédictives. En se limitant à une gamme de concentrations plus restreinte (de 5% à 15 %) il devient possible, à partir de la simple connaissance de la viscosité relative à forte vitesse de cisaillement de déduire la concentration en bentonite, à 10 % près.

IV . CONCLUSION

Le modèle qui a été utilisé nous a permis de caractériser le comportement rhéologique en régime stationnaire de suspensions biphasiques, constituées de particules de silice et de bentonite. L'identification de la dispersion de silice en tant que phase suspendante newtonienne, s'est avérée indispensable à une bonne modélisation. Des relations simples entre les paramètres

structuraux du modèle et la concentration en solide nous a fournit un moyen simple de prédire le comportement rhéologique de ces suspensions et d'évaluer les concentrations en solide par des mesures viscosimétriques stationnaires. Sur un plan plus fondamental, cette approche nous a permis de modéliser le comportement rhéologique stationnaire de milieux composés de deux phases solides ayant des comportements rhéologiques différents. Ce travail peut utilement être prolongé en considérant également le comportement instationnaire de ces milieux dispersés concentrés. Dans ce cas c'est le caractère élastothixotrope de la dispersion qui devra être modélisé.

V . MOTS CLES

Suspension concentrée; Silice; Bentonite, Suspension biphasique; Modélisation.

VI . BIBLIOGRAPHIE

- Vand V Viscosity of solutions and suspensions, J Phys Colloid Chem. 52, 277-299 (1948)
- Brinkman H.C. , The viscosity of concentrated suspensions et solutions. J. Chem.Phys. 20 (4) ,571-571 (19525)
- Batchelor G.K. The effect of brownian motion on the bulkk stress in a suspension of spherical particles J. Fluid Mech. 83 (1), 97-117 (1977)
- Mooney M. The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles J. Colloid Sci. 6, 162 170 (1951)
- Krieger I.M. A dimensional approach to colloid rheology. Trans. Soc. Rheol. 7, 101-109 (1963)
- Ree T. Eyring H. , Theory of non newtonien flow . I. Solidi plastic system. J. Appl. Phys., 26 (7), 793-799 (1955)
- Maron S.H, Pierce P.E Application of Ree-Eyring generalized flow theory to suspensions of spherical particles. J. Colloid Sci 11,80-95 (1956)
- Krieger I.M. Dougherty T.J. A mechanism for non newtonian flow suspensions of rigid spheres Trans. Soc. Rheol. 3, 137-152 (1959)
- Quemada D. Rheology of concentrated dispersed systems and minimum energy dissipation principle. I Viscosity - Concentration relationship. Rheol.Acta 16, 82-94 (1977)
- Quemada D. Rheology of concentrated dispersed systems and minimum energy dissipation principle. II A model of non newtonien shear viscosity in steady flows .Acta 17, 632-642 (1978)
- Farris R.J. Prediction of the viscosity of multimodal suspensions from unimodal viscosity. Trans.Soc.Rheol., 12 (2), 281-301 (1968).

Ouchiyama N., Tanaka T. Porosity estimation for random packings of spherical particles.
Ing. Eng. Chem. Fundam., 23 (4), 490-493 (1984)

Poslinski A.J., Rayan M.E. et Gupta R.K, Seshadri S.G et Frechette F.J. Rheological behavior of filled polymeric systems II. The effect of bimodal size distribution of particles.
J. Rheol ,32 (8), 751-771 (1988)

RHEOLOGIE DES FLUIDES A SEUIL, CAS DU GEL DE SILICE

C. LANOS *, A. DOUSTENS **

(* ATER et ** Maître de conférences)

Laboratoire GTMa, INSA de Rennes

20 av. des Buttes de Coësmes, 35043 Rennes Cedex

Résumé:

Nous proposons une analyse du comportement rhéologique des fluides à seuil reposant sur l'exploitation de tests au plastomètre. L'écoulement induit par cet appareil dépend du comportement intrinsèque du fluide et de son comportement aux interfaces. Ceci est illustré par des essais réalisés sur un gel de silice. La procédure expérimentale suivie permet de distinguer, sur les enregistrements, l'influence du comportement aux interfaces. L'analyse de ces enregistrements débouche sur l'identification du comportement du gel et permet de cerner l'influence sur ce comportement de différents paramètres : vitesse, pression, état de surface des interfaces...

1 Introduction:

Le travail présenté apporte une contribution à l'étude du comportement des fluides fermes, possédant un seuil de plasticité. De tels fluides sont présents dans tous les secteurs industriels: pharmaceutique, agro-alimentaire, bâtiment et génie civil..., de la pâte de ciment au gel cosmétique, de la pâte de kaolin aux pâtes alimentaires. Optimiser leur fabrication, leur moulage, ou leur transport nécessite d'une part de pouvoir identifier leur comportement et d'autre part d'analyser l'influence de différents paramètres sur ces comportements. Pour ce faire, les appareils traditionnels de viscosimétrie peuvent se révéler inutilisables. Outre les problèmes de mise en oeuvre des échantillons, les phénomènes liés à la localisation des déformations sur des plans de cisaillement ou l'apparition éventuelle d'un écoulement avec glissement aux parois compliquent le traitement des résultats expérimentaux.

Nous proposons d'exploiter des enregistrements réalisés sur un plastomètre pour identifier le comportement du fluide puis, de cerner l'influence sur ce comportement de la variation de divers paramètres. Des essais réalisés sur un gel de silice viennent illustrer la démarche.

Dans un premier temps, le comportement rhéologique intrinsèque d'un gel de silice est identifié pour des teneurs en eau élevées. Ensuite, l'exploitation d'essais réalisés

avec des états de surface différents, permet de comprendre l'influence de la loi de comportement aux interfaces sur les enregistrements.

Enfin, l'influence de la pression sur le comportement de gels à faible teneur en eau est évaluée à l'aide d'essais confinés. Les enregistrements ainsi fournis permettent également de vérifier le principe de découplage entre comportement intrinsèque et comportement aux interfaces d'un fluide reposant sur l'idée suivante. En associant à l'interface un critère de glissement fonction des contraintes aux parois, une élévation de la pression de confinement peut être suffisante pour passer d'un écoulement glissant avec frottement aux parois à un écoulement adhérent.

2 Le test au plastomètre:

2.1 Travaux antérieurs:

Nous devons les principales analyses théoriques de l'écoulement non viscosimétrique induit par le plastomètre à Scott [1] pour les fluides visqueux et à Covey [2] pour les fluides viscoplastiques. Ces travaux fournissent un ensemble de solutions, éventuellement approchées, à l'écoulement de fluides de comportements donnés.

Une façon originale d'identifier le comportement d'un fluide à seuil est fournie par Garling et Phan Thien [3] en lui associant un rhéogramme bilinéaire. Plus récemment, dans le cas d'écoulement de fluides viscoplastiques, Doustens et Laquerbe [4] construisent une méthode de tracé point par point du rhéogramme. Enfin, Lanos [5] propose une méthode itérative d'identification du comportement de fluides standards incompressibles et isotropes, en associant au plastomètre un outil de simulation numérique. Cette méthode permet, à partir d'une bibliothèque de solutions, de construire le comportement dont la réponse corrèle au mieux les enregistrements au plastomètre.

Vis à vis des écoulements plastiques, on peut citer les solutions analytiques proposées par Kendall [6] associées aux calculs de Pastor et Turgeman [7]. Ces derniers envisagent, pour leurs calculs, deux types de conditions aux limites: adhérence aux parois ou glissement avec frottement.

2.2 Configuration du plastomètre utilisé:

L'appareil utilisé est un plastomètre à plateaux circulaires coaxiaux et parallèles animés d'un mouvement de translation permettant leur rapprochement, sans rotation. Un échantillon de fluide placé entre ces deux plateaux est mis en compression et s'échappe radialement. Ce test présente une remarquable facilité de mise en oeuvre pour des fluides éventuellement très fermes, ce qui n'est généralement pas le cas des appareils classiques de rhéométrie.

L'écoulement non permanent résultant possède donc une symétrie de révolution. Nous noterons R le rayon des plateaux, h la hauteur entre plateaux, c la vitesse de rapprochement des plateaux et F l'effort enregistré sur les plateaux (voir figure 1).

Les enregistrements de F en fonction de h sont limités aux faibles valeurs de h/R ($< 0,3$) et menés avec une vitesse c constante durant l'essai, le volume inscrit entre les plateaux étant toujours saturé de fluide. c sera suffisamment faible pour considérer que l'écoulement est une succession d'étapes quasi-statiques. Le plastomètre est confiné dans une enceinte dont la pression de l'air ambiant P_c peut être réglée (entre 0, pression atmosphérique, et 1 MPa).

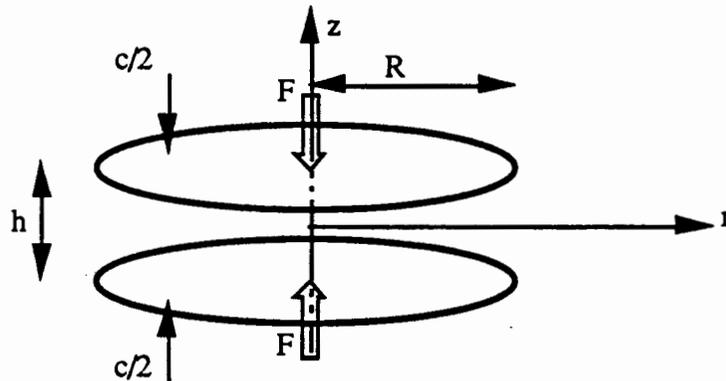


Figure 1 : Géométrie du plastomètre

2.3 Analyse de l'écoulement:

Les enregistrements expérimentaux fournissent des courbes $F(P_c, c, R, h)$. Parmi les paramètres, seul c , introduit la dimension temps. L'analyse dimensionnelle permet donc d'écrire les vitesses V_i au sein de l'écoulement sous la forme:

$$V_i = c \cdot f_i(r/R, z/R, h/R)$$

Les taux de déformation D_{ij} s'écrivent alors:

$$D_{ij} = c/R \cdot g_{ij}(r/R, z/R, h/R)$$

Dans ces équations, f_i et g_{ij} représentent des fonctions.

Il en résulte que la pression moyenne sur le plateau $F/(\pi \cdot R^2)$ est une fonction des trois paramètres ($P_c, h/R, c/R$). Lors de nos enregistrements c/R reste constant.

Une telle configuration de l'essai permet de présenter les paramètres globaux $P_c, c/R, h/R$ et $F^* = F \cdot h / (\pi \cdot R^3) - P_c \cdot h/R$, comme des paramètres séparables. Ces paramètres globaux permettent de formuler les solutions analytiques proposées pour l'écoulement de certains fluides.

Solution exacte de l'écoulement d'un fluide visqueux newtonien de viscosité μ :

$$F^* = \frac{3}{2} \cdot \mu \cdot \frac{c}{R} \cdot \left(\frac{R}{h}\right)^2$$

Solution proposée par Kendall [6] pour un fluide plastique de Von Mises de seuil K :

$$F^* = \frac{3}{2} \cdot K \cdot \frac{h}{R} + K$$

On note que la solution plastique est indépendante de c/R . Lanos [5] montre, par un équilibre de tranche que, si l'on impose un cisaillement égal à K à la paroi on obtient une solution approchée de la forme:

$$F^* = \frac{2}{3} \cdot K$$

De la même façon, si l'on impose un cisaillement nul à la paroi :

$$F^* = \frac{2}{\sqrt{3}} \cdot K \cdot \frac{h}{R}$$

Il semble donc que la solution construite par Kendall, dérivée de celle proposée par Hill [8] pour un problème plan, intègre une partie induite par le cisaillement aux parois et une partie induite par le frottement de la pâte émergeant du plastomètre sur la pâte inscrite entre les plateaux. Ce frottement agit comme un auto-confinement du fluide testé.

3 Comportement du gel de silice:

3.1 Composition:

Le gel résulte du mélange de fumée de silice et d'eau. La fumée de silice, fabriquée par Cabot, est une fumée synthétique amorphe, pure à 99,8%, obtenue par pyrolyse: CAB-O-SIL M5 (surface spécifique 200 m²/g), Résidus de tamis de 44 μm = 0,02%, densité 2,2 .

Les fines particules de silice présentent un fort potentiel de captage de l'eau. Des phénomènes électrochimiques vont donner au mélange une structure de gel. Suivant la teneur en eau du mélange, le gel obtenu se comporte différemment au malaxage.

Pour de faibles teneurs en eau, un mottage apparaît. Son comportement révèle une phase élastique suivie d'un écoulement plastique en compression et d'une rupture fragile en traction. On note une inclusion de bulles d'air dans le gel, ceci favorisant a priori le caractère élastique. Le gel ainsi formé ne semble pas adhérer aux parois.

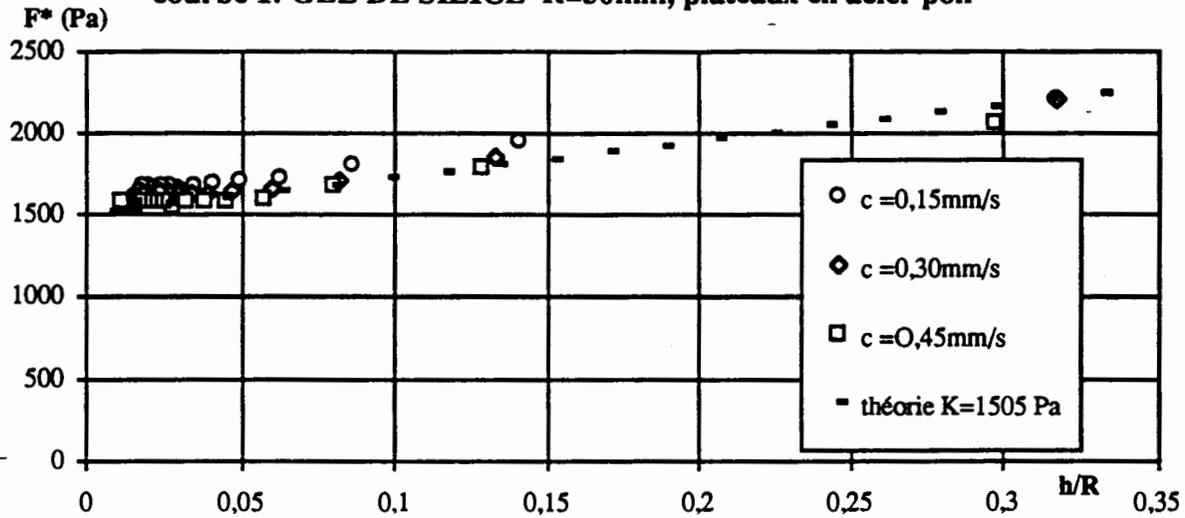
Pour des teneurs en eau supérieures, le gel devient collant aux parois, en passant par une étape intermédiaire où le gel s'amalgame sur les pales du malaxeur. Le caractère fragile de la rupture en traction s'estompe et s'oriente plus vers un comportement viscoplastique.

3.2 gels souples:

Pour un gel relativement souple, obtenu à teneur en eau élevée, des essais réalisés à différentes vitesses ($P_c = 0$), à l'aide de plateaux en acier poli, fournissent les courbes caractéristiques suivantes (courbe 1) dans le repère de paramètres globaux (h/R , F^*).

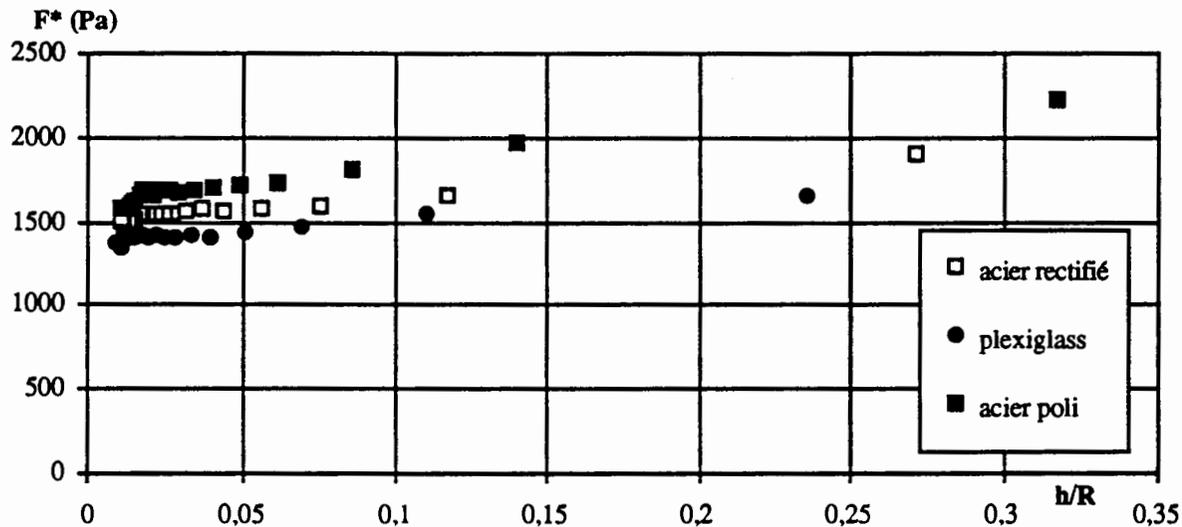
La superposition de ces caractéristiques confirme le comportement plastique du mélange. D'une part la caractéristique est linéaire et croissante et d'autre part elle est indépendante de la vitesse d'essai. Le comportement de ce gel semble proche d'une plasticité selon Von Mises de seuil $K = 1505$ Pa.

courbe 1: GEL DE SILICE R=50mm, plateaux en acier poli



Pour un autre échantillon, des essais réalisés avec trois types de surfaces de plateaux différentes (avec $P_c = 0$) fournissent les caractéristiques suivantes (courbe 2).

courbe 2: GEL DE SILICE R=50mm, $c=0,15 \text{ mm/s}$



On remarque en premier lieu que la nature de la surface modifie peu l'allure des courbes obtenues. Toutefois la caractéristique s'approchant au mieux de la réponse d'un fluide plastique adhérent est celle fournie par le test réalisé avec de l'acier poli. Puis vient l'essai sur l'acier rectifié et enfin le plexiglass. Les courbes caractéristiques sont globalement linéaires de pentes voisines, mais d'ordonnées à l'origine différentes. La modification de la nature des plateaux influence donc le seuil de cisaillement à l'interface mais pas l'auto-fretage de la pâte.

La pente des caractéristiques fournit la valeur du seuil, alors que l'ordonnée à l'origine fournit la valeur du cisaillement à l'interface. Le classement des types de surfaces vis à vis de ce cisaillement rejoint les constatations, faites par Djelal [9] (sur des pâtes de kaolin): les surfaces très peu rugueuses (acier poli $R_a = 0,04 \mu\text{m}$) peuvent

La lubrification diminue donc le cisaillement à l'interface (valeur de l'ordonnée à l'origine), mais ne modifie pas l'auto-fretage induit par le fluide émergeant radialement du plastomètre (pente de la caractéristique).

Au-delà de 4000 Pa, on note l'apparition d'une fragmentation croissante et régulière du fluide en secteurs en sortie de plastomètre. Cette fragmentation est en corrélation avec la diminution de la teneur en eau. Ce type de fragmentation est également constaté lors de tests sur des pâtes de kaolin, mais n'est jamais apparu pour les graisses (Lanos [5]). Simultanément apparaît également un frisage du gel à l'échappement du plastomètre (figure 2). Ces deux phénomènes sont caractéristiques d'une rupture sous traction. Le comportement de ces gels semble donc inclure une forme de critère de rupture en déformation. Ceci a pour conséquence de diminuer l'auto-fretage du fluide et produit, dans le repère $(h/R, F^*)$, une courbe caractéristique moins pentue.

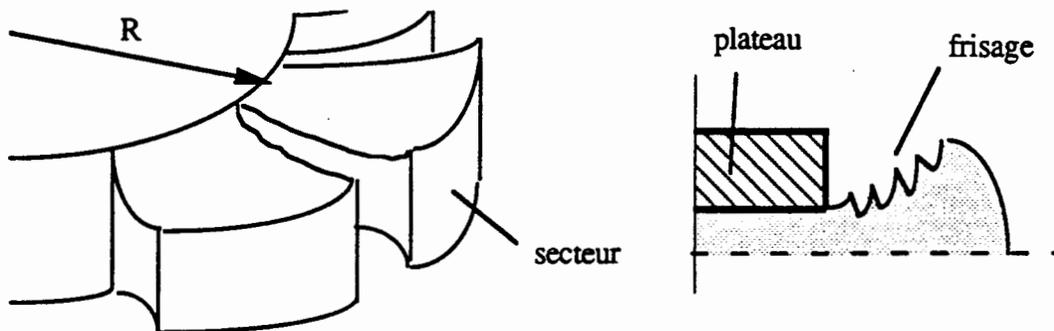


Figure 2: Morcellement en secteurs

On note également pour de faibles valeurs de h/R l'apparition d'une courbure des caractéristiques. L'allure de ces courbes, non influencées par la vitesse de l'essai, est similaire à celles correspondant aux solutions analytiques approchées, proposées par Lanos [5] ou Kendall [6], pour des écoulements de fluides plastiques (type Druker Prager) dont le seuil de plasticité dépend de la pression p :

$$K = K_0 + a \cdot p .$$

Solution approchée (pour $P_c = 0$) résultant de la prise en compte d'un cisaillement aux parois égale au seuil (sans auto-confinement du fluide) :

$$\frac{F^*}{K_0} = -\frac{h}{R} - \frac{\left(\frac{h}{R}\right)^2}{a^2} \cdot \left(1 + \frac{h}{2 \cdot a}\right) + \frac{\left(\frac{h}{R}\right)^3}{2 \cdot a^3} \cdot \exp\left(2 \cdot a \cdot \frac{R}{h}\right)$$

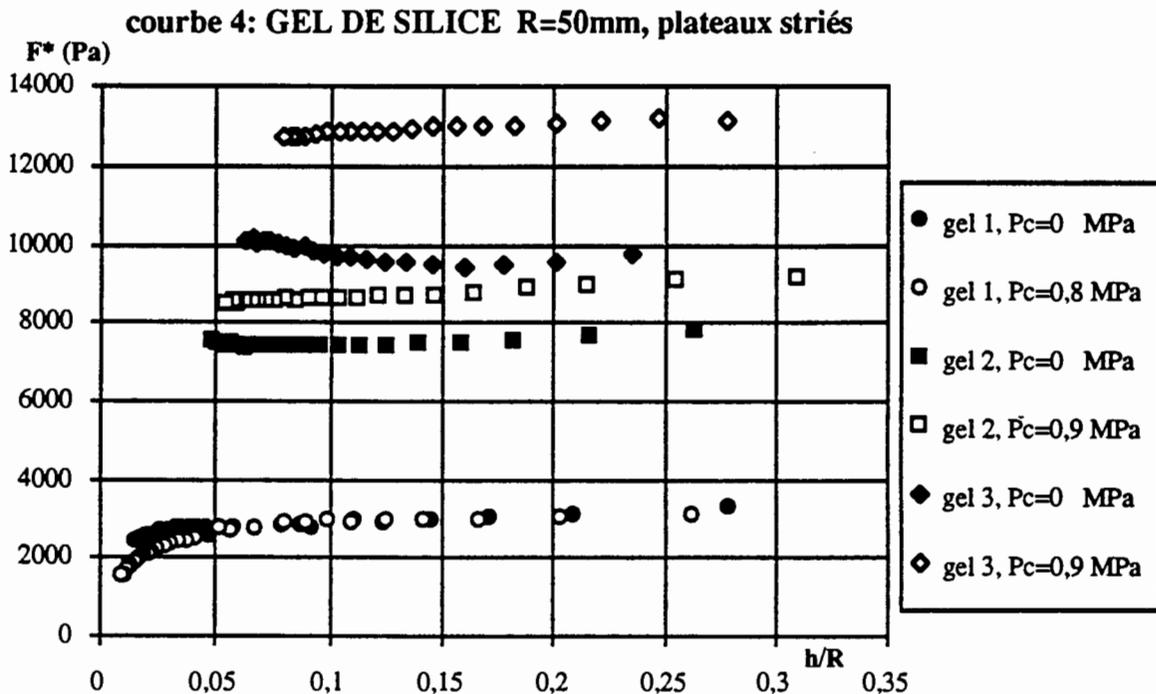
Solution considérant une pression moyenne homogène sur les plateaux :

$$\frac{F^*}{K_0} = \frac{1 + \frac{3}{2} \cdot \frac{h}{R}}{1 - a \cdot \left(\frac{3}{2} + \frac{R}{h}\right)}$$

3.4 Influence de la pression :

Le plastomètre est placé dans une enceinte fermée dont on peut contrôler la pression d'air. Ceci permet d'obtenir (courbe 4), pour des pressions différentes, les courbes caractéristiques relatives à trois gels de consistances différentes. Les essais sont réalisés avec des plateaux striés, à une vitesse de 0,15 mm/s.

On note que pour le gel le plus souple, l'enregistrement n'est pas influencé par la pression, ce qui accrédite l'identification de type plastique selon Von Mises. Pour des gels plus raides, les essais montrent que la modification de la pression de confinement n'influence pas la répartition angulaire de la fragmentation du fluide en sortie de plastomètre. Par contre, pour de faibles teneurs en eau du gel, l'influence de la pression devient conséquente, ce qui conforte l'idée d'associer à ces fluides un comportement plastique dépendant de la pression.

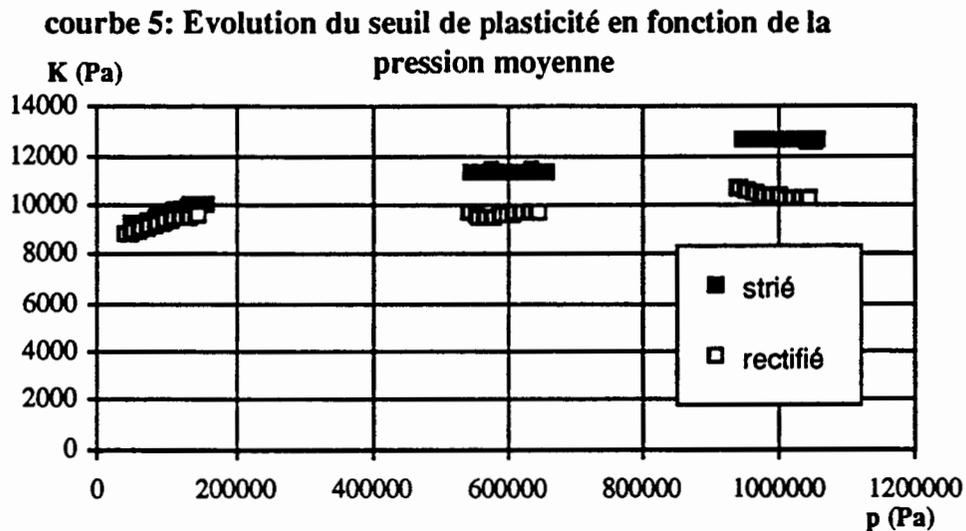


L'identification de ces gels, à l'aide de paramètres globaux, peut être entreprise de la façon suivante: le seuil K du fluide plastique selon Von Mises associé à chaque point de la caractéristique est calculé en posant :

$$F^* = \frac{3}{2} \cdot \alpha \cdot K \cdot \frac{h}{R} + K$$

α traduit l'effet du fractionnement en secteur à la sortie du plastomètre. Il est estimé à l'aide de la courbe caractéristique obtenue pour $P_c = 0,9$ MPa (à l'aide de la pente de la caractéristique). L'allure de l'évolution du seuil en fonction de la pression est indiquée par la courbe K fonction de la pression moyenne $p = F/(\pi \cdot R^2)$.

La courbe $K(p)$, présentée courbe 5, résulte de trois essais réalisés sur le gel 3 de la courbe 4, à $P_c = 0$ puis 0,5 et 0,9 MPa et $c = 0,15$ mm/s, avec des plateaux striés.



Pour de faibles pressions, le seuil K est sensiblement influencé par la pression p . Ceci renforce l'idée précédemment émise, d'associer au comportement sous faible pression une plasticité de type Drucker Prager. Par contre pour des pressions plus élevées l'influence de p sur K est moindre. L'allure générale du critère reste convexe.

Le même dépouillement est appliqué à des enregistrements provenant de trois essais réalisés aux mêmes pressions et même vitesse, mais avec des plateaux en acier rectifié. Ces plateaux engendrent a priori une modification des états de contraintes aux parois. Supposons qu'une "loi d'interface" reliant simplement les contraintes normales et tangentielles à la paroi gouverne l'état de contrainte à la paroi. Alors, une augmentation suffisante de la pression de confinement peut faire croître suffisamment l'effort normal à la paroi pour que le cisaillement à la paroi atteigne le seuil de plasticité du fluide. Dans ce cas, les courbes caractéristiques obtenues à l'aide de plateaux striés ou rectifiés se superposent.

L'hypothèse précédente, relative à la loi d'interface, ne semble pas vérifiée pour le gel testé à l'aide des plateaux rectifiés, du moins pour la gamme de pression utilisée. Ces essais montrent que le cisaillement aux interfaces reste inférieur au seuil et semble présenter une valeur asymptotique différente de celle du seuil de plasticité.

Pour ce gel, il semble illusoire de chercher à compenser l'influence de la loi d'interface par une élévation de la pression. En quelque sorte, on peut associer à l'interface un critère de glissement indépendant de la contrainte normale à la paroi. Le fluide plastique est alors en écoulement "glissant" (seuil de plasticité atteint) avec un cisaillement à la paroi imposé par le critère de glissement, obligatoirement inférieur ou égal au seuil de plasticité.

4 conclusions:

Les premiers essais réalisés sur le gel de silice mettent en évidence le caractère plastique prédominant du comportement de ce fluide. Les tests réalisés avec différents plateaux, de polis à striés, révèlent qu'il existe un état de surface correspondant à un minimum de l'effort de compression.

Une étude reposant sur l'analyse de paramètres globaux, permet alors, vis à vis des enregistrements, de découpler le rôle du comportement intrinsèque du fluide par rapport à celui de son comportement aux interfaces. Cette étude nous conduit à utiliser des plateaux striés pour identifier le comportement intrinsèque du gel pour différentes teneurs en eau.

L'exploitation du confinement, avec des plateaux striés, permet de montrer que ces fluides possèdent un comportement peu influencé par la pression (entre 0 et 1 MPa). Par contre, en présence de plateaux lisses (acier rectifié), l'utilisation du confinement n'est pas systématiquement suffisante pour s'affranchir des problèmes induits par la nature des interfaces. Vis à vis de l'écoulement d'un fluide plastique, l'action de l'interface est équivalente à une limitation du cisaillement à la paroi. On note que cette limite est également peu influencée par la pression (pour l'état de surface testé).

Afin de mieux maîtriser les phénomènes induits par le confinement, et ainsi parfaire la méthode d'identification des comportements intrinsèques et aux interfaces, nous envisageons de tester des pâtes de kaolin. Ces pâtes présentent des comportements intrinsèques fortement influencés par la pression. De plus, leurs écoulements peuvent également présenter des glissements aux interfaces.

Remerciements à G. Brigant, assistant ingénieur au Laboratoire GTMa de l'INSA de Rennes, pour son travail de conception du plastomètre et son assistance lors des multiples essais.

Bibliographie:

- [1] Scott J.R., (1935), IRI Trans., 10.
- [2] Covey G.H., (1977), "Application of the parallel plate plastometer to brown coal rheometry", thèse Melbourne Australie.
- [3] Garling D., Phan Thien N., (1984), "A numerical simulation of a plastic fluid in a parallel-plate plastometer", Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 14, 347-360.
- [4] Doustens A., Laquerbe M., (1987), "Exploitation rhéométrique du test d'écrasement entre plateaux parallèles", Journal de Mécanique Théorique et Appliquée, vol. 6, n°2, 315-332.
- [5] Lanos C., (1993), "Méthode d'identification non viscosimétrique de comportements de fluides", thèse INSA Rennes.
- [6] Kendall K., (1987), "Interparticle Friction in Slurries", Tribology in particulate technology, edited by Briscoe et Adam, pp 91-103.
- [7] Pastor J., Turgeman S., (1982), "Limit analysis in axisymmetrical problems: numerical determination of complete statical solutions", Int. J. Mech. Sci., 24, 95-117.
- [8] Hill R., (1950), "Mathematical theory of plasticity", Clarendon Press, Oxford.
- [9] Djelal C., (1991), "Analyse du phénomène de frottement des mélanges eau-argile concentrés contre les surfaces métalliques", thèse INSA Rennes.