

ISSN 1149 – 0039

*Les Cahiers de Rhéologie*



Volume XVIII, Numéro 1

Juin 2001

Édités par :

Le Groupe Français de Rhéologie

*Les Cahiers de Rhéologie*



**GROUPE FRANCAIS DE RHEOLOGIE**

---

**Président : P. FLAUD**

**Trésorier : F. CHINESTA**  
**Secrétaire : J.L. DOUBLIER**

**LBHP**  
**Tour 33/34 et 33/43 2è étage**  
**2 Place Jussieu – Case 7056**  
**75251 PARIS CEDEX 05 (France)**

---

**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) »*

Ce numéro des Cahiers de Rhéologie est le dernier d'une longue série ! Le conseil du GFR a en effet décidé de vous proposer une nouvelle présentation, un nouveau titre, et d'adjoindre à la revue un comité de lecture.

Les consignes aux auteurs seront présentées dans le prochain bulletin du GFR et nous serons heureux d'accueillir vos propositions d'article.

A bientôt donc,

Le Président  
Patrice FLAUD

# Les Cahiers de Rhéologie

SOMMAIRE DU VOLUME XVIII, no 1

JUIN 2001

## ◆ ARTICLE

**Méthode de correction du glissement d'une suspension de bentonites dans un écoulement plan cône.....7**

Jean-Louis BONIFAS

Institut de Mécanique des Fluides UMR 7507

2 rue Boussingault – 67000 STRASBOURG

## ◆ COMMUNICATIONS

« 3<sup>ème</sup> Journée des Jeunes Rhéologues »- La Colle sur Loup- Mai 2000

**Etude des écoulements dans le procédé de moulage par transfert de résine (RTM).....17**

J. DUPUY, E. LEROY, A. MAAZOUZ

Laboratoire des Matériaux Macromoléculaires UMR CNRS 5627

Institut National des Sciences Appliquées de Lyon-Bat 403-3<sup>è</sup> ét.

20 av. A. Einstein – 69621 VILLEURBANNE Cedex

**Influence du mode opératoire sur les caractéristiques rhéologiques des gels de Carbopols.....33**

L. BAUDONNET<sup>1</sup>, P. MICHAUD<sup>1</sup>, J.L. GROSSIORD<sup>2</sup>, F. RODRIGUEZ<sup>1</sup>

1 – Laboratoire de Pharmacie Galénique-Faculté des Sciences Pharmaceutiques

35 chemin des Maraîchers – 31062 TOULOUSE

2 – Laboratoire de Physique Pharmaceutique UMR 8612 – Paris XI

rue J.B. Clément – 92296 CHATENAY MALABRY Cedex

**Écoulement généré par le lâcher instantané d'un barrage retenant un fluide viscoplastique.....45**

K. DEBIANE, J.M. PIAU

Laboratoire de Rhéologie UMR 5520 (UJF-INPG-CNRS)

B.P.53 – 38041 GRENOBLE Cedex 9

**Traînée et stabilité d'objets en fluide à seuil.....55**

L. JOSSIC, A. MAGNIN

Laboratoire de Rhéologie CNRS UMR 5520 – INP Grenoble Université J. Fourier

Domaine Universitaire – B.P. 53 – 38041 GRENOBLE Cedex 9

## METHODE DE CORRECTION DU GLISSEMENT D'UNE SUSPENSION DE BENTONITES DANS UN ECOULEMENT PLAN CÔNE

Jean-Louis BONIFAS

Institut de Mécanique des Fluides UMR - 7507

2, rue Boussingault 67000 STRASBOURG

**Résumé :** le cisaillement d'une suspension aqueuse de bentonite induit un glissement qui est la conséquence de l'effet sigma. Dans cet exposé nous présentons une méthode expérimentale de correction du glissement d'une suspension. Des particules de bentonite sont collées sur les parois d'une géométrie plan cône. Ce procédé réduit considérablement l'effet sigma et permet de vérifier la validité des corrections numériques.

**Abstract :** the sigma effect happens with suspension shearing which leads to a slipping against the walls of the geometry. In this work we set out an experimental method to correct the suspension slipping. Bentonite particles are pasted on the plan cone geometry walls. This process significantly reduces the sigma effect and allows us to check the validity of the numeric corrections

### .1 Introduction :

La plupart des fluides industriels sont des mélanges liquides polyphasiques se présentant soit sous forme de suspensions avec une phase liquide et une phase solide soit sous forme d'émulsions avec deux phases liquides non miscibles, ou très faiblement. Il en est ainsi des produits alimentaires qui font l'objet de traitements et de conditionnements de plus en plus complexes. D'autres secteurs industriels comme le génie civil et l'exploitation pétrolière utilisent des fluides sous cette forme. Il est donc important de connaître les propriétés rhéologiques de ces matériaux dans le but d'améliorer la productivité des chaînes de production ou des sites d'exploitation.

L'importance économique de ces fluides justifie les travaux d'investigation dont ils ont fait l'objet et qui ont conduit à définir des propriétés bien particulières comme par exemple le glissement pariétal pour les fortes concentrations aussi bien pour les suspensions que pour les émulsions.

Des études assez récentes mettent en lumière les conditions dans lesquelles se réalise ce glissement. F. PIGNON, A. MAGNIN et J. M. PIAU<sup>[1]</sup> montrent dans quelles conditions a lieu le glissement avec un gel de laponite. D'autres travaux avaient pour but d'améliorer la correction de ce glissement, c'est le cas notamment de L. de VARGAS, J. PEREZ-GONZALES et J. ROMERO-BARENQUE<sup>[2]</sup> qui utilisent le modèle de correction de MOONEY pour l'écoulement d'une solution aqueuse de xanthane dans un rhéomètre

---

**Mots clefs :** bentonite, suspension, glissement, plan cône, écoulement de cisaillement.

capillaire. Cependant, la méthode de MOONEY bien qu'elle soit efficace est relativement longue car elle exige trois séries de mesures et se prête assez mal à l'étude de certaines suspensions dont la durée peut affecter la qualité du fluide.

YOSHIMURA et PRUD'HOMME<sup>[3]</sup> ont amélioré la procédure de MOONEY en ramenant les données expérimentales à deux séries de mesures au lieu de trois. Ils appliquent leur méthode à une suspension aqueuse de bentonite dans un écoulement de COUETTE et à une émulsion aqueuse d'huile de paraffine dans un écoulement entre plans parallèles. Leur approche originale du phénomène a insufflé un nouvel élan aux travaux de recherche dans ce domaine.

En 1995, S. C. JANA et autres<sup>[4]</sup> déterminent le glissement d'une suspensions de poly méthacrylate de méthyle (PMMA) dans du TRITON X100 par effet DOPPLER à l'aide d'un laser dans un écoulement de COUETTE. Cette procédure n'est applicable qu'à des fluides qui ne dissipent que très faiblement la lumière et limitent par conséquent la portée de son efficacité. Dans ce qui suit, nous voulons montrer que le glissement pariétal dans un écoulement pour une suspension de bentonite peut être corrigé non seulement par un traitement de surface original mais aussi par le calcul en adoptant les mêmes hypothèses que la méthode de YOSHIMURA et PRUD'HOMME.

## **.2 Correction expérimentale :**

### **.2.0 L'appareillage utilisé :**

Nous utilisons un viscosimètre rotatif à contrainte imposée de type CARRIMED CS100 piloté par ordinateur. Les paliers de l'arbre de transmission sont pneumatiques afin de rendre négligeables les pertes par frottements. Le couple du moteur, programmé à partir de l'ordinateur par choix de la contrainte, est contrôlé par le microprocesseur de l'appareil. La vitesse de cisaillement est déterminée grâce à un tachymètre optique de haute résolution.

Ce type d'appareil est très sensible aux effets d'inertie de l'équipage mobile et c'est pour cette raison que nous avons fait des essais en écoulement en balayage de contrainte avec une vitesse de progression de  $1\text{Pa}\cdot\text{min}^{-1}$ . Cette vitesse est suffisamment faible pour minimiser les effets d'inertie de l'équipage mobile et éviter le recours à la méthode de KRIEGER pour les corriger.

Les essais sont effectués en écoulement entre un plan et un cône d'abord de diamètre 4cm avec les angles de  $1^\circ$  et  $2^\circ$ , ensuite de diamètre 6cm avec des angles identiques.

Le plateau de l'appareil maintient l'échantillon à une température constante à  $\pm 0,1^\circ\text{C}$  grâce à une sonde à effet PELTIER. Les essais effectués à la température de  $20^\circ\text{C}$ , c'est-à-dire à une température proche de la température ambiante du laboratoire, ne peuvent donner qu'un très faible gradient en température qui peut être négligé.

L'échantillon testé est enfermé dans une enceinte saturée pour limiter, à des quantités négligeables, les pertes par évaporation car les essais en écoulement peuvent durer plusieurs heures.

## .2.1 Etalonnage de l'appareil :

Pour réaliser cet étalonnage, notre choix s'est porté sur une huile de viscosité calibrée à  $0,200\text{Pa}\cdot\text{s}$  à  $20^\circ\text{C}$  car nous obtenons un  $\eta_\infty$  de cet ordre de grandeur à cette température avec les suspensions de bentonite étudiées. Les essais furent réalisés avec des géométries plan cône de diamètres et d'angles différents avec balayage en contrainte.

L'utilisation de cette géométrie est intéressante pour notre méthode car la vitesse de cisaillement mais également la contrainte tangentielle sont indépendantes du rayon du cône. Cela nous autorise à penser que pour un même fluide, pris dans des conditions identiques, nous devons trouver les mêmes résultats pour deux cônes de même angle mais de rayons différents.

La figure 1 montre l'étalonnage réalisé à l'aide de l'huile calibrée avec des diamètres de 4cm et 6cm et les angles de  $1^\circ$  et  $2^\circ$ . Nous remarquons que les géométries à  $1^\circ$ , quel que soit le diamètre, sont assez proches des valeurs nominales (valeurs données par le fournisseur). Nous pouvons déjà conclure qu'il existe une continuité entre la géométrie plan cône de diamètre 4cm et celle de diamètre 6cm. pour le même angle de  $1^\circ$ . Cependant, avec un diamètre de 6cm ou de 4cm et un angle de  $2^\circ$ , les valeurs expérimentales ne sont plus linéaires et s'écartent avec une marge croissante des valeurs nominales à partir d'une valeur de  $100\text{s}^{-1}$  avec une contrainte tangentielle de  $20\text{Pa}$ .

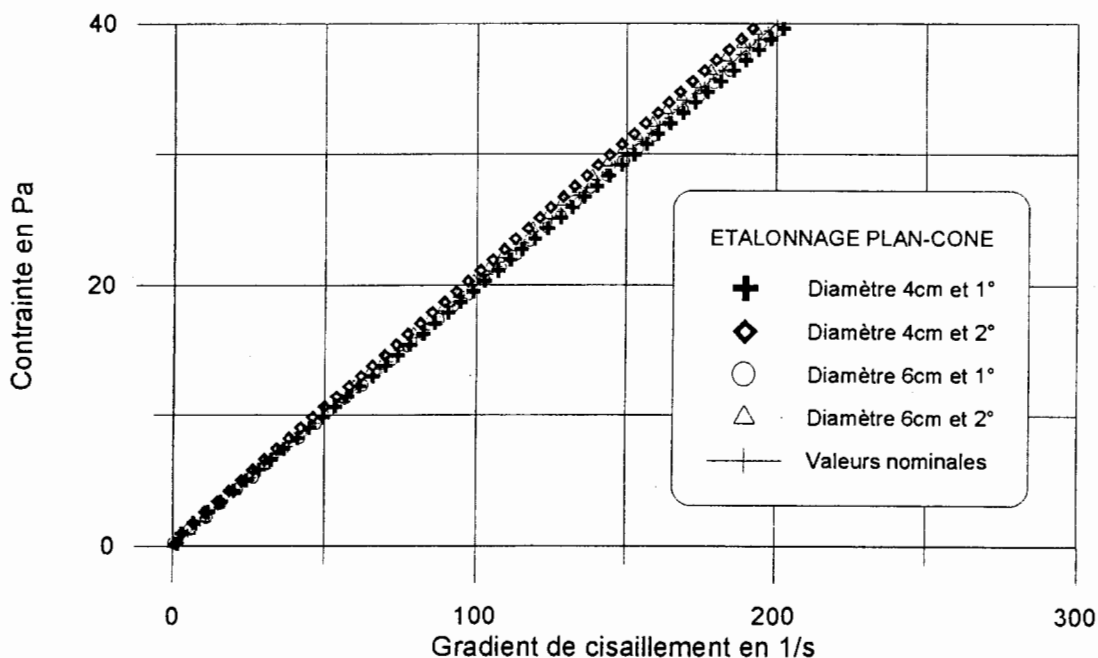


Figure 1: comparaison des résultats obtenus en cisillant une huile étalon de viscosité de  $0,200\text{Pa}\cdot\text{s}$  à  $20^\circ\text{C}$ .

Les écarts entre les valeurs obtenues pour des cônes de même diamètre mais d'angles différents peuvent atteindre 6% en moyenne, ce qui est assez important. Par contre, pour des cônes de même angle mais de diamètres différents, les écarts entre les séries de mesures se limitent à une moyenne de 0,5% avec les cônes de 1° et à 1,4% avec ceux de 2°. Ces résultats nous ont déterminés à porter notre choix sur les cônes de 1° plutôt que sur ceux à 2° pour la suite des essais.

## **.2.2 Préparation des suspensions :**

Les échantillons sont des suspensions de bentonite dans de l'eau distillée préparées toujours suivant le même protocole.

Une agitation magnétique supérieure à 24heures, généralement de 36heures, est pratiquée afin d'assurer l'homogénéité du mélange ainsi que sa stabilité chimique comme le préconisent BESQ et autres<sup>[5]</sup>. La préparation est ensuite agitée avec le broyeur à turbine pendant trente minutes puis laissée au repos durant une heure pour atteindre l'équilibre thermique avant d'être soumise à l'essai.

Les essais d'écoulement avec balayage en contrainte se composent d'une montée, d'un palier et d'une descente en contrainte, le tout constituant un cycle. Les suspensions de bentonites présentant un caractère de thixotropie, quatre de ces cycles sont nécessaires pour arriver à la reproductibilité des rhéogrammes, situation rencontrée par d'autres auteurs <sup>[6]</sup>. C'est pour cette raison que les courbes représentées dans les figures suivantes sont les dernières d'une série de cycles.

## **.2.3 Traitement des surfaces par une couche « isomorphe » :**

Le voisinage de la paroi de la géométrie contrarie l'arrangement des particules au sein de la suspension, et cela est d'autant plus marqué que les particules de bentonite sont essentiellement des phyllosilicates à faces chargées <sup>[7]</sup>. En effet, lors du cisaillement, il se produit une migration des particules vers la masse de la suspension. Cela a pour résultat de ne plus avoir un fluide homogène puisque plusieurs régions n'auront pas la même viscosité. Au contact de la paroi, nous aurons alors une zone pariétale déplétive en particules qui va favoriser le glissement : c'est ce que l'on appelle l'effet sigma. Pour limiter ce glissement, plusieurs auteurs ont utilisé du papier abrasif pour rendre les surfaces de la géométrie rugueuses<sup>[8]</sup>. Or, l'effet sigma dépend de la taille des aspérités et cette technique de collage ne convient que pour des surfaces planes.

Dans le but d'éviter ces inconvénients, nous avons collé une fine couche de poudre de bentonite directement sur les parois de la géométrie. Après un contrôle optique minutieux qui détermine l'uniformité de la couche, les surfaces sont prêtes à recevoir l'échantillon de la suspension.

L'avantage de notre technique, c'est qu'elle tient compte de la taille des particules en suspension et que la rugosité peut s'appliquer pratiquement à toutes les surfaces.



## .2.4 Résultats expérimentaux

La figure 2 montre les rhéogrammes obtenus avec les mêmes géométries plan cône que celles utilisées lors de l'étalonnage. L'essai est effectué sur une suspension aqueuse de concentration massique 6% de bentonite dont la préparation a suivi le même protocole que celui qui a été énoncé plus haut, afin d'obtenir la meilleure reproductibilité.

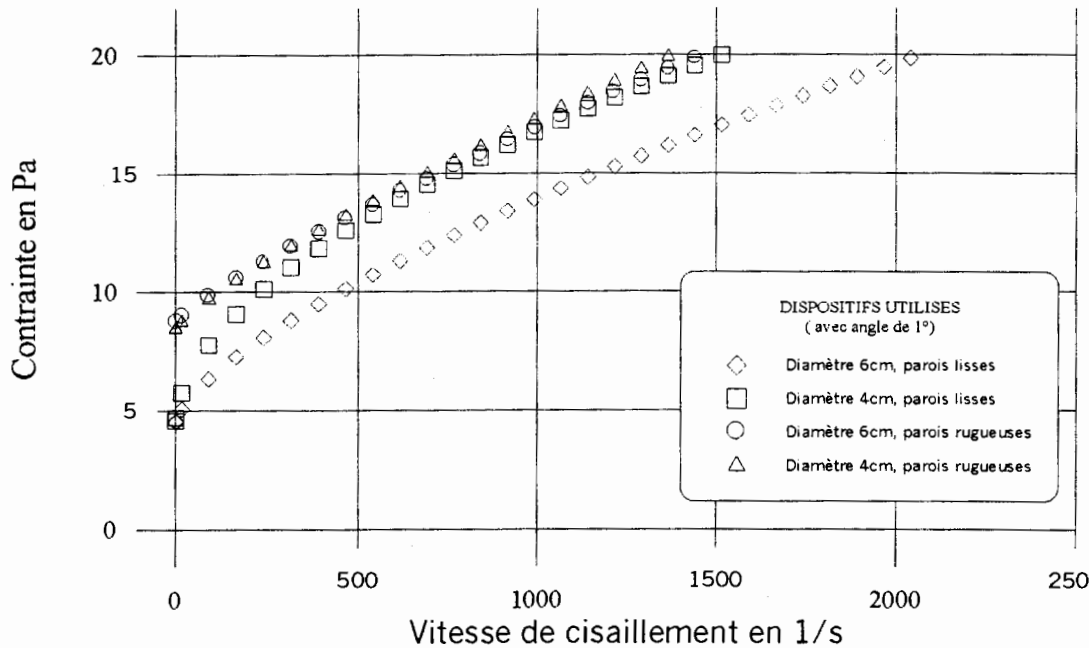


Figure 2 : rhéogrammes obtenus pour quatre entrefers différents par cisaillement d'une suspension de bentonite à 6% avec balayage en contrainte.

Nous pouvons remarquer que les rhéogrammes obtenus avec des parois rugueuses sont pratiquement superposables, alors que ceux à parois lisses montrent une différence très significative qui diverge pour les valeurs élevées de la vitesse de cisaillement. Cette caractéristique est plus remarquable pour le cône de diamètre 6cm que pour celui de 4cm puisque ce dernier tend à se rapprocher de façon très significative des rhéogrammes relatifs aux parois rugueuses pour les valeurs élevées de la vitesse de cisaillement.

Ces résultats nous amènent à conclure partiellement que ces couches rugueuses atténuent très fortement l'effet sigma et montrent ainsi l'importance de la taille des aspérités relativement à celle des particules. En outre, nous avons des valeurs de référence qui vont nous permettre d'envisager une correction numérique dont le domaine de validité peut être vérifié dans l'intervalle de valeurs étudiées.

### .3 Correction par le calcul :

#### .3.0 Hypothèses :

Nous partons de la méthode de A. YOSHIMURA et R. K. PRUD'HOMME qui utilise celle de MOONEY simplifiée à deux séries de mesures : nous supposons l'épaisseur de la région pariétale de déplétion négligeable par rapport à l'entrefer de la géométrie, le glissement est considéré comme une discontinuité de la vitesse, et la vitesse de glissement ne dépend que de la valeur de la contrainte de cisaillement.

#### .3.1 Mise en équation[<sup>9</sup>] :

Si nous considérons deux cônes avec des rayons et des angles respectifs  $R_1$  et  $\alpha_1$  pour le premier et  $R_2$  et  $\alpha_2$  pour le second, nous pouvons écrire, avec  $r$ , la distance de l'axe de rotation,  $\Omega$ , la vitesse de rotation et  $u_s$ , la vitesse de glissement :

$$r.d\Omega = u_s \quad \text{soit} \quad d\Omega = \frac{u_s}{r} \quad \{1\}$$

Or, en introduisant la vitesse de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et l'angle du cône  $\alpha$ , nous obtenons :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\alpha} \quad \text{et} \quad d\dot{\gamma} = \frac{d\Omega}{\alpha} \quad \{2\}$$

Dans l'équation 2,  $d\dot{\gamma}$  représente la variation de la vitesse de cisaillement due au glissement. Ces relations expriment la vitesse de cisaillement apparente en fonction de la vitesse de cisaillement vraie et de l'élément différentiel qui traduit la variation due au glissement. Donc, si nous supposons les caractéristiques du glissement identiques pour chaque cône, nous avons :

$$\dot{\gamma}_{aR_1} = \dot{\gamma}_R + d\dot{\gamma}_{R_1} \quad \text{soit} \quad \dot{\gamma}_{aR_1} = \dot{\gamma}_R + \frac{2u_s}{R_1\alpha_1} \quad \text{pour le premier cône} \quad \{3\}$$

$$\dot{\gamma}_{aR_2} = \dot{\gamma}_R + d\dot{\gamma}_{R_2} \quad \text{soit} \quad \dot{\gamma}_{aR_2} = \dot{\gamma}_R + \frac{2u_s}{R_2\alpha_2} \quad \text{pour le second} \quad \{4\}$$

En combinant les équations 3 et 4 et en posant  $\alpha_1 = \alpha_2$ , nous arrivons finalement à la vitesse de cisaillement corrigée :

$$\dot{\gamma}_R(\tau_R) = \frac{R_2\dot{\gamma}_{aR_2}(\tau_R) - R_1\dot{\gamma}_{aR_1}(\tau_R)}{R_2 - R_1} \quad \{5\}$$

Cette correction est complétée en utilisant la relation de MOONEY-RABINOWITCH qui s'applique aux fluides non newtoniens à condition d'être dans un cycle d'écoulement rhéogoniométrique reproductible. Nous avons alors :

$$\dot{\gamma} = \left( \frac{3 \cdot n' + 1}{n'} \right) \frac{\dot{\gamma}_a}{4} \quad \text{avec} \quad n' = \frac{d \log \tau}{d \log \dot{\gamma}_a} \quad \{6\}$$

Comme nous supposons que la relation  $\tau = \eta \cdot \dot{\gamma}$  est toujours valable localement, nous déduisons de l'équation 5 :

$$\eta(\dot{\gamma}_R) = \frac{\tau_R \cdot (R_2 - R_1)}{R_2 \cdot \dot{\gamma}_{aR_2}(\tau_R) - R_1 \cdot \dot{\gamma}_{aR_1}(\tau_R)} \quad \{7\}$$

Pour l'équation 7, nous rappelons que la vitesse de cisaillement est fonction de la contrainte. A partir des équations 3 et 4 nous obtenons la vitesse de glissement :

$$u_s(\tau_R) = \frac{R_1 \cdot R_2 \cdot \alpha_1 \cdot \alpha_2 \cdot [\dot{\gamma}_{aR_2}(\tau_R) - \dot{\gamma}_{aR_1}(\tau_R)]}{2 \cdot (R_1 \cdot \alpha_1 - R_2 \cdot \alpha_2)} \quad \{8\}$$

### 3.2 Discussion des résultats :

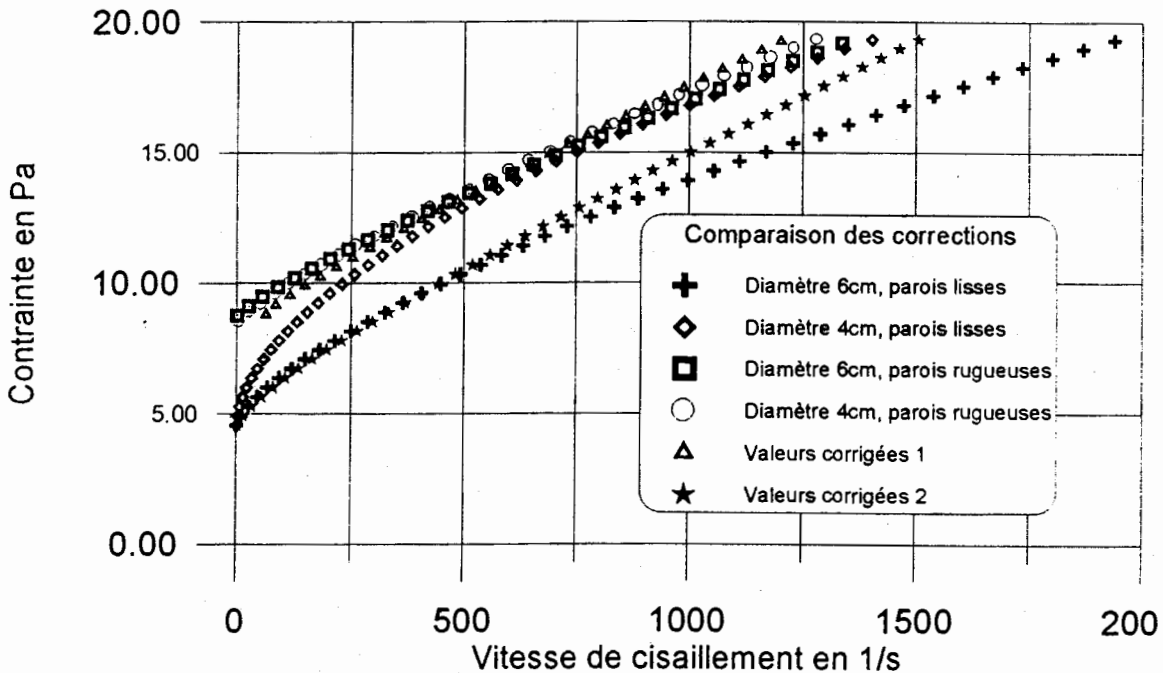


Figure 3 : comparaison des différentes corrections obtenues : les valeurs corrigées 2 sont celles obtenues avec la méthode de YOSHIMURA et PRUD'HOMME, alors que les valeurs corrigées 1 sont celles qui sont obtenues avec notre méthode.

Dans la figure 3, nous avons maintenu les courbes obtenues sur la figure 2 qui mettaient en évidence l'efficacité du traitement de surfaces. Nous avons ajouté les courbes obtenues au moyen de deux corrections numériques.

La méthode de correction de A. YOSHIMURA et R. K. PRUD'HOMME ne semble apporter une amélioration appréciable que pour des vitesses de cisaillement supérieures à  $1000\text{s}^{-1}$  et montre ainsi sa faible incidence pour les valeurs faibles du cisaillement où le glissement peut être relativement important.

Notre méthode de correction semble plus efficace dans l'intervalle des valeurs explorées puisque les valeurs calculées sont pratiquement superposables aux valeurs mesurées avec les parois rugueuses. Toutefois, les valeurs corrigées paraissent s'écarter des valeurs de la courbe témoin obtenue avec les parois rugueuses au-delà de  $1000\text{s}^{-1}$ , alors que c'est au-delà de cette valeur que le modèle de YOSHIMURA et PRUD'HOMME tend à se rapprocher de cette courbe témoin.

Ces résultats montrent que les deux méthodes sont assez complémentaires pour corriger un domaine de valeurs assez étendu.

#### **.4 Conclusion :**

Nous avons sensiblement amélioré la méthode de correction du glissement pour une suspension de bentonites en prenant les hypothèses de A. YOSHIMURA et R. K. PRUD'HOMME et en complétant cette correction par l'application de la relation de MOONEY et RABINOWITSCH à la vitesse de cisaillement apparente. Notre procédé original de traitement des parois d'écoulement nous a permis de vérifier la validité des résultats obtenus avec les deux méthodes de correction. Nous en déduisons que notre correction n'est efficace que pour des vitesses de cisaillement ne dépassant pas  $1000\text{s}^{-1}$ . Cependant, elle reste assez satisfaisante pour des vitesses de cisaillement supérieures. Une étude complémentaire avec d'autres suspensions devra être entreprise afin de vérifier la généralisation de cette méthode et même de l'améliorer en élargissant son domaine d'application.

---

#### **REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES :**

<sup>1</sup> F. PIGNON, A. MAGNIN et J. M. PIAU, Ecoulements de suspensions thixotropes d'argile, Les Cahiers de Rhéologie, 1994.

<sup>2</sup> L. de VARGAS, J. PEREZ-GONZALES et J. ROMERO-BARENQUE, Experimental evidence of slip development in capillaries and a method to correct for end effects in the flow of xanthan solutions, The Society of Rheology, 37(5), 1993.

<sup>3</sup> YOSHIMURA et PRUD'HOMME, Wall slip corrections for Couette and parallel disk viscometers, The Society of Rheology, 32(1), 1988.

---

<sup>4</sup> S. C. JANA, B. KAPOOR, A. ACRIVOS, Apparent wall slip velocity coefficients in concentrated suspensions of non colloidal particles, *Journal of Rheology*, 39 (6), November/December 1995.

<sup>5</sup> BESQ A., REICH E., PANTET A., MONNET P., BOUARD R., *Les Cahiers de Rhéologie*, vol X, 1992

<sup>6</sup> P. BERTHIER et P. FLAUD, Comportement rhéologique stationnaire d'une dispersion concentrée de silice bentonite, *Les cahiers de rhéologie*, Vol. XII, 1995.

<sup>7</sup> R. E. GRIM, N. GÜYEN, *Bentonites*, ELSEVIER, 1972

<sup>8</sup> Frédéric MOLLET, Contribution à l'étude de l'écoulement d'un fluide thixotrope, Thèse de l'Université de Nancy, 1996.

<sup>9</sup> J.-L. BONIFAS, Contribution à l'étude de la viscosité des suspensions de bentonites, Thèse de l'ULP de Strasbourg, 1998.

## **ETUDE DES ECOULEMENTS DANS LE PROCÉDE DE MOULAGE PAR TRANSFERT DE RESINE (RTM)**

J. DUPUY, E. LEROY, A. MAAZOUZ

Laboratoire des Matériaux Macromoléculaires (UMR CNRS 5627)  
Institut National des Sciences Appliquées de Lyon - Bât. 403 - 3e ét.  
20, av. A. EINSTEIN – 69621 Villeurbanne cedex

### **RESUME**

Le procédé RTM (Resin Transfert Molding) consiste à fabriquer des pièces en matériaux composites « en injectant une résine thermodurcissable dans un moule fermé à l'intérieur duquel un renfort fibreux a été préalablement disposé ».

Ce travail concerne la caractérisation des paramètres matériau nécessaires à la simulation de l'étape de remplissage du moule, dont la maîtrise est cruciale pour le contrôle des propriétés de la pièce finale.

Il est divisé en deux parties : La première est consacrée à l'étude et l'optimisation des méthodes de caractérisation du tenseur de perméabilité du renfort. Quant à la deuxième partie, elle concerne la modélisation de l'évolution de la viscosité de la matrice thermodurcissable au cours du procédé.

### **ABSTRACT**

The RTM (Resin Transfer Molding) process consists in making composite parts "by injecting a thermoset resin into a closed mold in which a fibrous reinforcement has been previously preplaced".

The present work deals with the characterization of the material parameters needed for the simulation of the injection step of the process, which appends to be crucial for the control of the part's final properties.

It is organized in two parts: The first one focuses on the study and optimization of the methods used to characterize the reinforcement permeability tensor, while the second part deals with the modeling of thermoset viscosity evolution during the injection.

### **MOTS CLE**

Procédé RTM - Loi de DARCY – perméabilité - polymères thermodurcissables - chimiorhéologie

## INTRODUCTION

Au procédé de Moulage par Transfert de Résine (Resin Transfer Molding : RTM), on associe généralement un certain nombre de procédés industriels actuels regroupés sous l'appellation de « procédés d'injection sur renfort » qui met par ailleurs en évidence le principal intérêt du concept RTM, illustré par la figure 1.

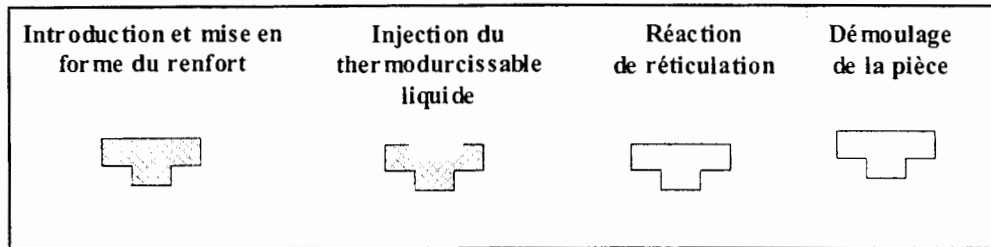


Figure 1 : Etapes principales des procédés LCM.

La première étape du procédé consiste en effet à mettre en forme le renfort fibreux sec qui est introduit dans un moule. Après fermeture du moule et compression du renfort, l'armature de la pièce composite finale est entièrement définie. Il reste ensuite à injecter un polymère therm durcissable liquide qui vient imprégner le renfort. Une fois le moule rempli, la réaction de réticulation est initiée et finalement, le démoulage intervient lorsque la pièce a atteint un niveau de réticulation suffisant.

La contrepartie de cette séparation du design de la structure du renfort et la mise en œuvre du composite proprement est que l'étape de remplissage du moule va conditionner en grande partie la qualité la pièce finale. De ce fait, la maîtrise et l'optimisation du procédé passent nécessairement par le développement d'outils de simulation permettant de prédire l'écoulement au cours de l'injection.

A l'échelle macroscopique, ce dernier peut être modélisé en considérant le renfort comme un solide poreux et en appliquant la loi de DARCY :

$$\bar{v} = -\frac{\bar{K}}{\eta} \cdot \nabla P \quad \text{Équation 1}$$

L'avantage de cette loi est qu'elle permet de relier les paramètres de l'écoulement :  $V$ , la vitesse du fluide et  $\nabla P$ , le gradient de pression, à l'aide de seulement deux paramètres matériau : la viscosité  $\eta$  du fluide et un tenseur de perméabilité  $\bar{k}$  qui traduit la résistance du renfort au flux de matière qui le traverse.

Cependant, comme le font remarquer certains auteurs (Advani et al., 1994 ; Fontana, 1998) le savoir faire actuel en matière de simulation numérique reste beaucoup plus avancé que les capacités à mesurer et à prédire ces deux propriétés.

Partant de ces constats, le travail présenté ici se concentre d'une part sur l'étude et l'optimisation des méthodes de mesure de la perméabilité, et d'autre part sur la modélisation de l'évolution de la viscosité du therm durcissable au cours du procédé.

## CARACTERISATION DU TENSEUR DE PERMEABILITE

Le tenseur de perméabilité étant symétrique, sa caractérisation ne nécessite théoriquement que la détermination de six paramètres indépendants : L'orientation des trois directions principales  $X_p$ ,  $Y_p$ ,  $Z_p$  et les valeurs des perméabilités principales associées  $k_{X_p}$ ,  $k_{Y_p}$  et  $k_{Z_p}$ . La perméabilité effective dans n'importe quelle direction de l'espace peut ensuite être calculée à partir de ces six paramètres.

Cependant, la majorité des renforts utilisés en RTM sont de type bidimensionnels (mats, tissus). Les directions principales  $X_p$  et  $Y_p$ , sont alors supposées être dans le plan des plis de renfort et la direction  $Z_p$  perpendiculaire à celui-ci (figure 2).

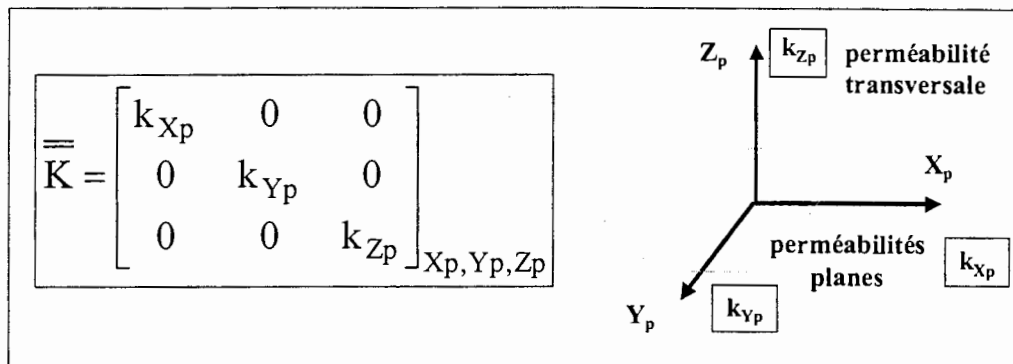


Figure 2 : Composantes du tenseur de perméabilité.

Nous nous sommes donc intéressés à deux techniques de mesure : la méthode de l'écoulement radial, visant à déterminer les directions ( $X_p$ ,  $Y_p$ ) et les valeurs des perméabilités principales associées ( $k_{X_p}$ ,  $k_{Y_p}$ ) qualifiées de perméabilités planes et la méthode de l'écoulement unidirectionnel transversal, permettant de déterminer la valeur  $k_{Z_p}$ , appelée perméabilité aussi transversale par opposition aux deux premières.

Dans les paragraphes suivants, nous décrirons chacune de ces méthodes puis la démarche d'optimisation effectuée.

### Mesure des perméabilités planes par la méthode de l'écoulement radial.

Dans cette méthode, le renfort est placé dans un moule carré ou rectangulaire la plupart du temps transparent, et le fluide est injecté au centre du moule à l'aide d'un seuil d'injection circulaire. On observe alors un écoulement radial (figure 3). Du fait de l'anisotropie de la perméabilité dans le plan des plis ( $k_{X_p} \neq k_{Y_p}$ ), le front de matière observé est de type elliptique. L'équation de l'écoulement, obtenue à partir de la loi de Darcy et d'une condition d'incompressibilité du fluide, peut être exprimée dans le système d'axes correspondant aux directions principales de perméabilité plane (Adams et al., 1988) :

$$k_{x_p} \frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + k_{y_p} \frac{\partial^2 P}{\partial y^2} = 0$$

Équation 2



La résolution analytique étant impossible, les auteurs utilisent généralement une transformation du système de coordonnées par la figure 4. Physiquement, cette transformation a pour effet de transférer l'anisotropie du problème d'écoulement à la géométrie du seuil d'injection.

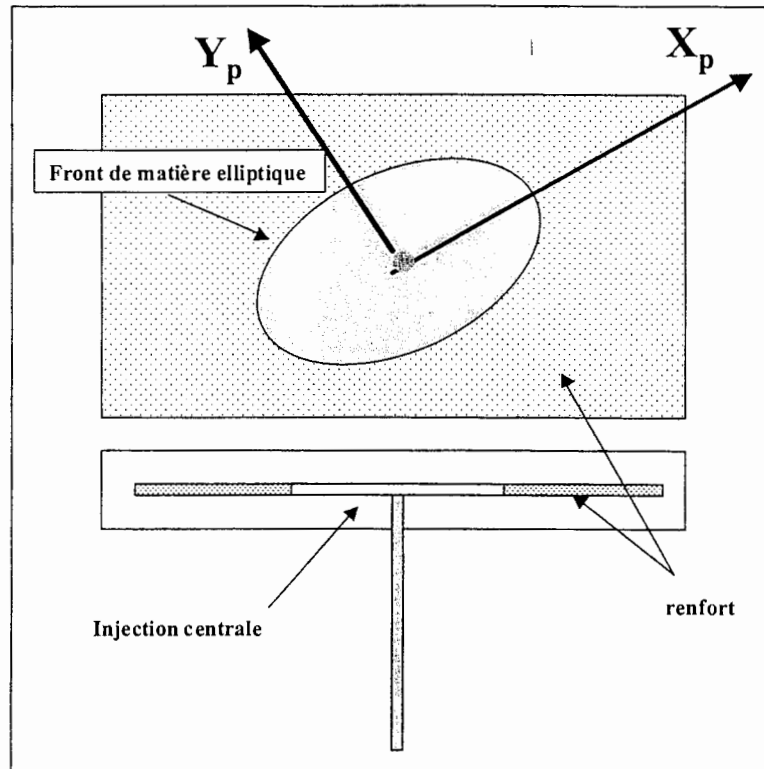


Figure 3 : Méthode de l'écoulement Radial.

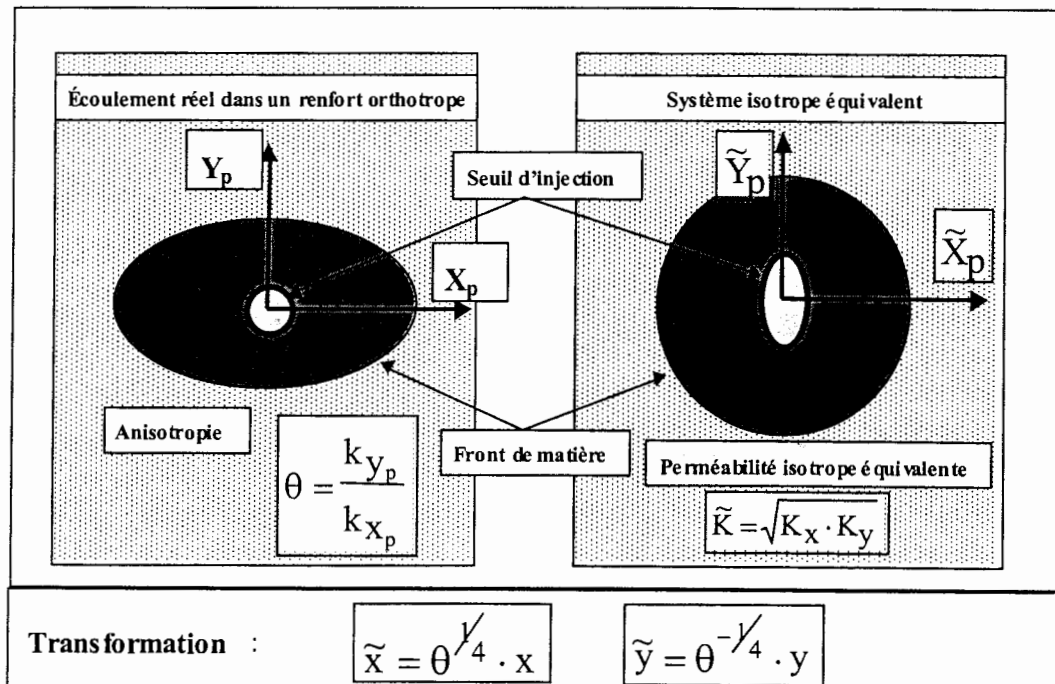


Figure 4 : Système isotrope équivalent.

On passe ainsi de l'écoulement dans un milieu anisotrope à partir d'un seuil d'injection circulaire à un écoulement dans un milieu isotrope mais cette fois à partir d'un seuil d'injection elliptique.

L'avantage de cette transformation est pour le système isotrope équivalent, le front de matière devient circulaire et l'équation de l'écoulement peut être résolue. Dans le cas d'une injection à débit constant  $Q_e$  par exemple, on peut exprimer l'évolution de la pression au seuil d'injection  $P_e$  et du rayon du front  $R$  (Advani et al., 1994) :

$$P_e = \frac{Q_e \cdot \eta}{4\pi \cdot h \cdot \varepsilon \cdot K_r} \ln \left[ 1 + \frac{Q_e \cdot t}{\pi \cdot h \cdot \varepsilon \cdot R_0^2} \right] \quad \text{Équation 3}$$

$$\left( \frac{R}{R_0} \right)^2 = 1 + \frac{Q_e \cdot t}{\pi \cdot h \cdot \varepsilon \cdot R_0^2} \quad \text{Équation 4}$$

Où :  $h$  et  $\varepsilon$  sont respectivement l'épaisseur du moule et la porosité du renfort,  $R_0$  le rayon du seuil où la pression est mesurée et  $K_r$  la perméabilité radiale isotrope.

A partir de ces expressions il devient alors possible de déterminer la perméabilité  $K_r$  par simple ajustement des prévisions de l'évolution de la pression d'injection et du rayon du front de matière aux mesures expérimentales.

Ainsi, pour un renfort orthotrope quelconque d'anisotropie  $\theta$  prédéterminée, on peut facilement déterminer la valeur de la perméabilité isotrope équivalente  $\tilde{k}$  à partir de l'évolution des rayons principaux  $R_{fx}$  et  $R_{fy}$  du front de matière elliptique. Les valeurs des perméabilités principales sont ensuite données par les équations suivantes.

$$k_{y_p} = \sqrt{\theta} \cdot \tilde{k} \quad \text{Équation 5}$$

$$k_{x_p} = \frac{\tilde{k}}{\sqrt{\theta}} \quad \text{Équation 6}$$

Néanmoins, comme le lecteur l'aura compris, la réussite de cette procédure d'identification dépend essentiellement de la connaissance de l'anisotropie.

Cette dernière est la plupart du temps déterminée à partir de la relation suivante, valable lorsque le régime d'écoulement « elliptique » est établi (Chan et Wang, 1991, Carter et al., 1996).

$$R_{fx}/R_{fy} = \sqrt{K_{x_p}/K_{y_p}} \quad \text{Équation 7}$$

Cependant, le temps nécessaire pour atteindre la forme elliptique parfaite est d'autant plus long que l'anisotropie du renfort et le rayon du seuil d'injection sont importants (Um et Lee, 1999 ; Weitzenbock et al. 1999).

Une étude en simulation (Um et Lee, 1999) montre d'une part que suivant l'anisotropie, on peut observer jusqu'à 30 % d'écart entre la valeur déterminée par cette méthode et la valeur réelle durant la période d'établissement du régime elliptique, et

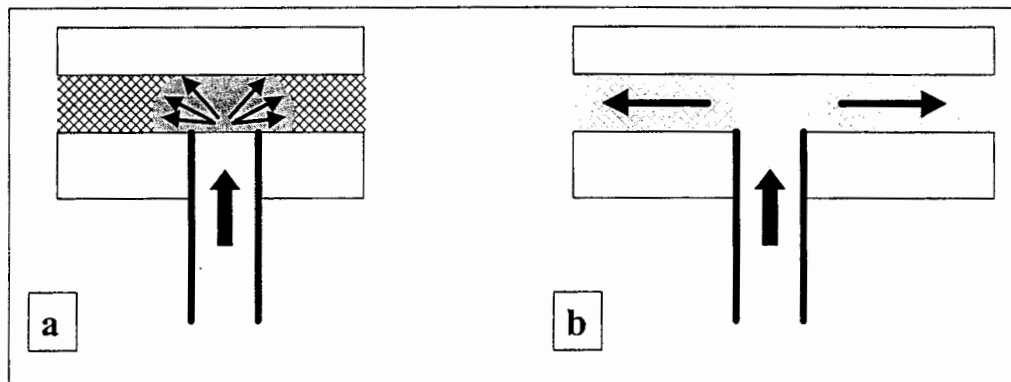
d'autre part que cet écart devient négligeable pour un rapport ( $R_{xf} / R_0$ ) supérieur à 10 quelles que soit l'anisotropie et les conditions d'injection.

Ces auteurs proposent alors une correction empirique de l'anisotropie pour rayons plus faibles en fonction du rayon du front du système isotrope équivalent et de l'anisotropie, déterminée à partir de simulations pour différents degrés d'anisotropie.

D'un point de vue pratique, il semble plus intéressant de chercher à se placer dans des conditions pour lesquelles le régime elliptique s'établit rapidement au cours de l'expérience.

Nous avons donc cherché à concevoir un dispositif expérimental permettant d'obtenir des rayons de front importants tout en minimisant le rayon du seuil d'injection. Ces deux objectifs se heurtent chacun à un problème : D'une part, l'utilisation d'un moule transparent limite la taille de ce dernier à cause des problèmes de déformation, d'autre part les dispositifs d'injection habituellement utilisés ont plutôt tendance à augmenter le rayon  $R_0$  qu'à le minimiser.

En effet, l'examen de la littérature montre deux méthodes d'injection : soit l'injection est réalisée à travers le renfort (figure 5 a), soit le renfort est préalablement percé d'une ouverture circulaire dans laquelle est réalisée l'injection (figure 5 b). Chacune de ces configurations conduit en fait à une perturbation de l'écoulement au voisinage du seuil.



**Figure 5 :** Dispositifs d'injection employés dans la littérature.

- Dans le cas d'une injection à travers le renfort, certains auteurs observent un écoulement tridimensionnel dû à l'effet de la perméabilité transversale (Gouley, 1995). De plus si des pressions importantes sont utilisées, le renfort a tendance à se tasser au droit du seuil, entraînant un écoulement préférentiel à la surface de la paroi du moule.
- De la même manière, lorsque l'injection a lieu dans une ouverture circulaire, l'utilisation d'une pression d'injection trop élevée conduit à une déformation locale du renfort dans les premiers instants de l'écoulement (*plug flow*). Cela a pour effet de modifier localement la perméabilité et peut influencer de manière importante sur les mesures (Um et Lee, 1999). Une solution à ce problème consiste alors à imposer une augmentation progressive de la pression par paliers.

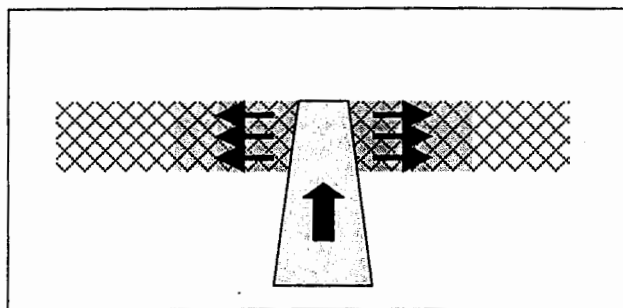
Un autre problème de l'injection dans une ouverture circulaire, est que cette géométrie entraîne un écoulement singulier au voisinage du seuil d'injection. Une étude en simulation (non référencée pour cause de confidentialité, 1999) met en évidence que le champ de pression montre des écarts importants avec la loi de Darcy dans un rayon de 25 mm autour de l'axe du seuil, ce qui rend impossible des mesures de pression à une distance plus proche.

Cette mesure de pression définissant le rayon effectif  $R_0$  du seuil, celui-ci se trouve alors augmenté, ce qui a pour effet d'augmenter le rayon du front minimal, à partir duquel le régime elliptique est établi.

Pour remédier à ce problème de nombreux auteurs (Carter et al., 1996 ; Weitzenbock et al., 1999) mesurent la pression en amont de l'injection, à l'aide d'un capteur placé sur la paroi du tube véhiculant le fluide. Cependant une telle configuration introduit nécessairement des erreurs car le gradient de pression au niveau du seuil est très important. Elle n'est donc pas satisfaisante.

### *Conception du dispositif de mesure*

Nous avons donc conçu une buse d'injection spéciale (figure 6) permettant de s'affranchir des problèmes de perturbation de l'écoulement au voisinage du seuil généralement observés avec les systèmes d'injection classiques. Elle est constituée d'un cône poreux en bronze fritté de très forte perméabilité ( $10^{-7} \text{ m}^2$ ) qui joue le rôle de milieu diffuseur. Le flux est ainsi canalisé en douceur et pénètre uniformément dans toute l'épaisseur du renfort ce qui permet de positionner un capteur de pression très près de l'axe du seuil sans risquer des erreurs de mesure importantes. On obtient ainsi un seuil de rayon effectif  $R_0$  de seulement 10 mm.



**Figure 6 :** Buse d'injection.

Ceci nous permet ensuite de dimensionner le moule, composé de deux plaques en plexiglas de dimensions (800\*800\*30 mm), séparées par des entretoises d'épaisseur variables (3,5,6 et 10mm). L'épaisseur des plaques les rend théoriquement suffisamment rigides pour empêcher leur déformation pour des taux de fibres inférieurs à 60 %. La fermeture du moule est assurée par 12 vis réparties à la périphérie.

Le capteur de pression (modèle PE102 commercialisé par la société TME) est placé sur la plaque supérieure. L'injection a donc lieu à travers la plaque inférieure, une caméra CCD-V200E (Sony), ou un appareil photo numérique installé au dessus du moule permettant de suivre l'évolution du front de matière.

L'ensemble du dispositif ainsi obtenu est représenté sur la figure 7. Il est associé à un programme de reconnaissance de forme permettant ainsi de déterminer l'orientation des axes principaux et de l'évolution des rayons de front  $R_{fx}$  et  $R_{fy}$ .

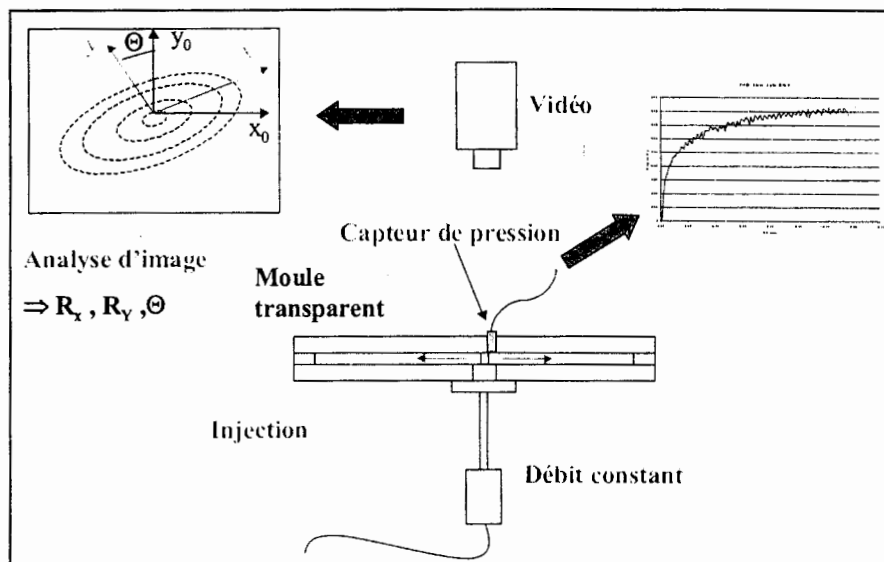


Figure 7 : Dispositif de mesure par la méthode de l'écoulement radial.

### Validation expérimentale

Les premiers tests réalisés à débit constant à l'aide de différents renforts (mats de verre ; tissus sergés équilibré 50/50 et déséquilibré 90/10) et d'un fluide non réactif (Diocetyl phtalate) sont très encourageants (figure 8) : Ils montrent d'une part que les ordres de grandeur des valeurs de perméabilités obtenues pour les différents renforts testés sont en accord avec ceux rapportés dans la littérature avec des renforts du même type bien qu'une comparaison précise ne soit pas possible du fait de la difficulté d'obtenir des renforts de structure rigoureusement égale. D'autre part, on observe que même pour des renforts très anisotropes (tissu sergé 90/10), le régime elliptique est atteint pour des rayons faibles par rapport aux dimensions du moule.

Cependant, la validation complète du dispositif nécessite encore un nombre important de tests et fera l'objet d'une publication ultérieure.

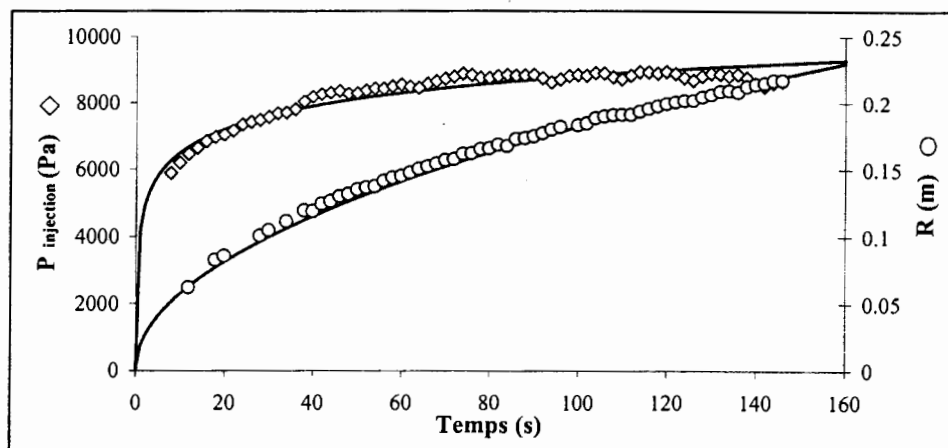


Figure 8 : Exemple de simulation de l'écoulement radial (renfort isotrope).

## Caractérisation de la perméabilité transversale par la méthode de l'écoulement 1D

Cette méthode consiste à créer un écoulement unidirectionnel à travers l'épaisseur du renfort. Pour cela, des échantillons sont généralement réalisés par un empilement de plis de renfort, à travers lequel le fluide est poussé à débit constant pendant que la chute de pression induite est enregistrée à l'aide d'un capteur (figure 9). La perméabilité transversale est alors obtenue par application de la loi de Darcy dans la direction de l'écoulement (Gouley, 1995 ; Miller et Clark, 1978 ; Trevino et al. 1991).

Compte tenu de la difficulté de préparation des échantillons et afin d'éviter la perturbation des mesures par la formation d'écoulements préférentiels sur les bords de l'échantillon, nous avons choisi de développer un montage de type différentiel. Nous avons opté pour un montage modulaire pouvant être utilisé pour une mesure absolue (Méthode de l'écoulement 1D classique) ou une mesure relative (montage différentiel) de la perméabilité transversale.

### Conception du dispositif

Un dispositif utilisant des échantillons cylindriques ( $\varnothing=46$  mm) a tout d'abord été développé. Il est composé de deux parties amovibles (figure 9) : Une cellule d'injection sur laquelle est implanté un capteur de pression et une cellule porte échantillon, celui-ci étant maintenu entre deux plaques poreuses.

Pour les mesures de perméabilité absolue, les deux cellules sont reliées directement entre elles (figure 9). En injectant à débit constant et en mesurant la pression en amont de l'échantillon, on peut en déduire la perméabilité de ce dernier, après un étalonnage à vide.

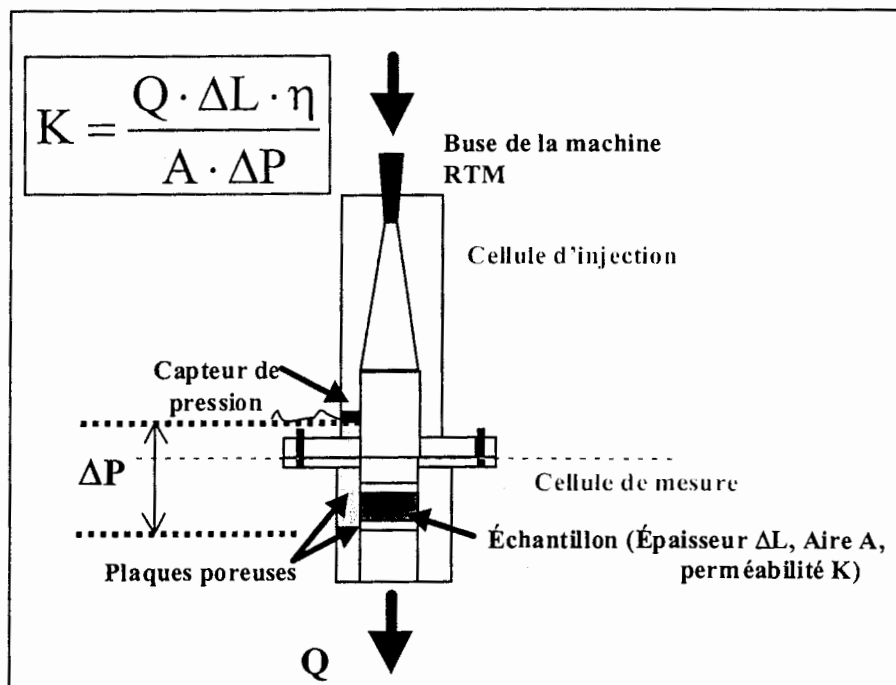


Figure 9 : Mesure absolue de la perméabilité transversale.

Parallèlement, une troisième cellule est réalisée pour les mesures différentielles (figure 10). Le principe consiste alors à appliquer la loi de Darcy dans les deux branches du dispositif : l'une débouchant sur le porte échantillon et l'autre sur une vanne jouant le rôle de perte de charge réglable et pouvant être assimilée à un échantillon de référence de perméabilité  $K_{ref}$ . On a alors :

$$Q = K \cdot \frac{A\varepsilon}{\eta} \cdot \frac{\Delta P}{\Delta L} \quad \text{et} \quad Q_{ref} = K_{ref} \cdot \frac{A\varepsilon_{ref}}{\eta} \cdot \frac{\Delta P}{\Delta L}$$

Les valeurs de la section A et de la perte de charge  $\Delta P/\Delta L$  étant les mêmes dans les deux branches, on obtient finalement :

$$\frac{Q}{Q_{ref}} = \frac{K}{K_{ref}} \cdot \frac{\varepsilon}{\varepsilon_{ref}}$$

Équation 8

Ainsi, connaissant la porosité  $\varepsilon$  de l'échantillon testé, on peut calculer sa perméabilité par simple comparaison des débits Q et  $Q_{ref}$ . Il est cependant nécessaire de calibrer l'appareil au préalable. Pour cela, il suffit de placer un échantillon de référence de perméabilité et de porosité connues dans le porte échantillon et de régler la vanne de manière à obtenir le même débit dans chaque branche.

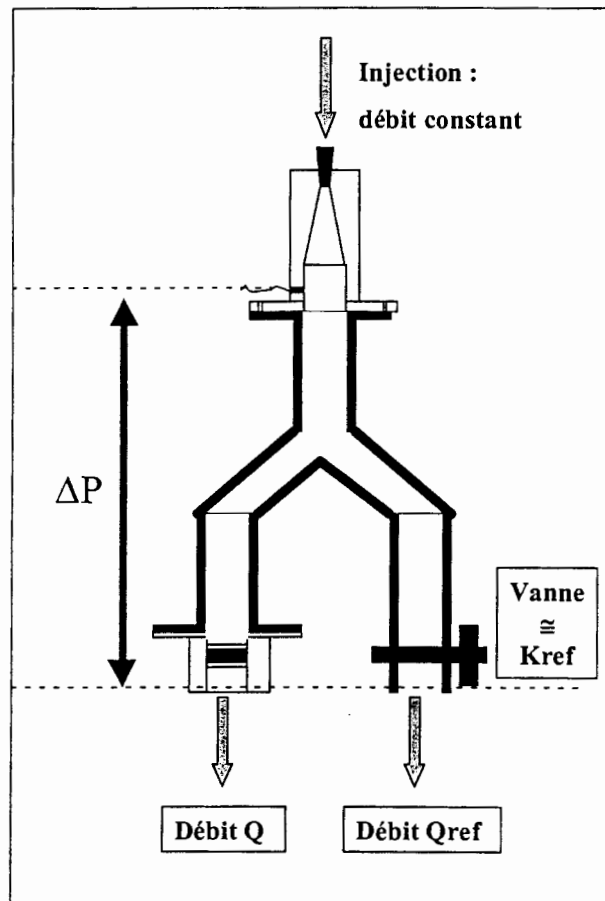


Figure 10 : Mesure différentielle de la perméabilité transversale.

### Validation expérimentale

Comme dans le cas précédent, la validation complète du dispositif réalisé nécessite encore un nombre important de tests. Nous avons cependant pu tester l'efficacité du montage différentiel.

Pour cela, nous avons étudié l'évolution de la perméabilité transversale d'un mat de verre dont nous avons fait varier la porosité à l'aide des deux méthodes : absolue et différentielle. Pour cette deuxième, un échantillon de porosité 80 % dont la perméabilité a été mesurée par la méthode absolue est pris comme référence pour l'étalonnage.

On observe alors que les résultats obtenus pour les deux méthodes pour des porosités inférieures concordent très bien (figure 11). Par contre la méthode différentielle semble offrir une meilleure reproductibilité.

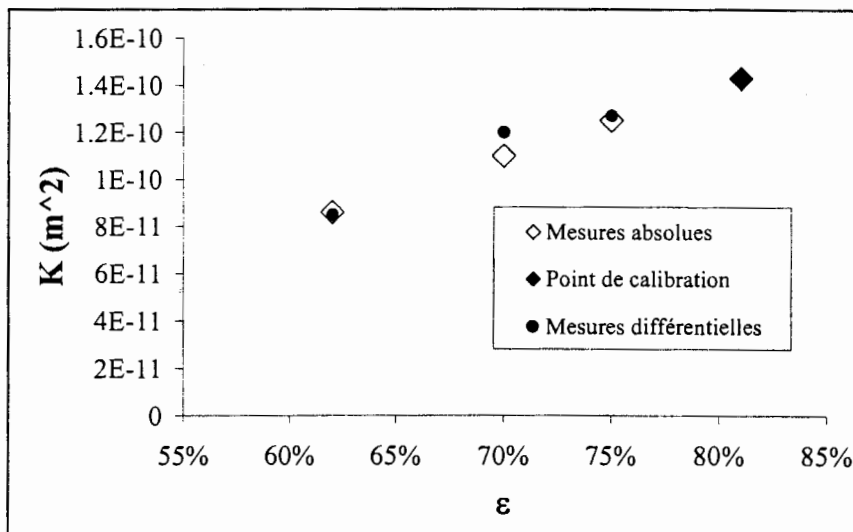


Figure 11 : Validité du montage différentiel.

## ETUDE ET MODELISATION DE L'EVOLUTION DE LA VISCOSITE

La modélisation de la chimiorhéologie des polymères thermodurcissables est particulièrement difficile. En effet si l'on considère l'évolution simultanée de la structure du polymère et de son comportement rhéologique au cours de la réaction de réticulation, on observe différentes étapes :

- A l'état initial, le milieu est composé d'une population stable de molécules de taille relativement faible. Le thermodurcissable a alors généralement un comportement newtonien et sa viscosité, qui est uniquement fonction de la température, peut être modélisée à l'aide de l'équation de DOOLITTLE :

$$\ln \left[ \frac{\eta_0(T)}{\eta_0(T_g)} \right] = \frac{C_1 [T - T_g]}{C_2 + [T - T_g]}$$

Équation 9

Où :  $C_1$  et  $C_2$  sont deux coefficients et  $T_g$  est la température de transition vitreuse.



- Puis au cours de la réaction, la taille moyenne des molécules croit, ce qui a pour effet une augmentation de la viscosité. Le comportement reste cependant newtonien jusqu'à l'approche du gel chimique où la viscosité devient dépendante de la fréquence de sollicitation avant de diverger au point de gel.

Une telle complexité explique pourquoi à l'heure actuelle seul des lois de comportement empiriques sont employées pour rendre compte de l'évolution de la viscosité. Un problème général de ces lois est qu'elles ne garantissent pas la possibilité de décrire le comportement expérimental de n'importe quel thermdurcissable.

Nous proposons donc une réflexion sur la démarche à adopter lors du choix d'un modèle pour la modélisation. Nous commencerons par décrire les principaux modèles existants, puis nous essaierons de dégager les avantages et les inconvénients de chacun d'eux.

L'ensemble des modèles décrits dans la littérature a fait l'objet d'une revue relativement récente (Halley, 1996). Nous nous contenterons donc de citer les plus significatifs.

#### Lois du type $\eta = \eta(t, T)$ .

Ce sont les plus anciennes historiquement. Leur principal intérêt est qu'elles ne dépendent pas de la précision du modèle cinétique nécessaire au calcul du degré de conversion. Cette particularité est d'un intérêt non négligeable en début de réaction où, comme le fait remarquer Fontana (Fontana, 1998), la viscosité est extrêmement sensible à l'augmentation de la conversion.

Néanmoins, ces lois étant toutes basées sur un formalisme de type Arrhenius, elles ne permettent pas la description du comportement de thermdurcissables ayant un mécanisme réactionnel complexe, ce qui est généralement le cas en RTM.

#### Lois du type $\eta = \eta(\alpha, T)$ .

Malgré la difficulté de leur mise en œuvre, ces lois sont beaucoup plus en vogue que les précédentes. La principale raison à cela est qu'elles sont obtenues à partir des formalismes théoriques. On peut les classer en deux catégories.

La première décrit la viscosité comme le produit d'un facteur de forme  $F$  dépendant de la taille et de la forme des molécules présentes et d'un facteur de friction  $\zeta$  fonction de la température ou de la densité :

$$\eta = F \cdot \zeta$$

**Équation 10**

En général,  $\zeta$  est considéré égal à la viscosité initiale et  $F$  comme une fonction de la masse molaire moyenne en  $M_w$  elle-même liée au degré de conversion. Leur principal désavantage sera donc une grande sensibilité à ce dernier qui nécessite de disposer d'un modèle cinétique très fiable.

Cependant, les modèles dérivés à partir de ce formalisme sont actuellement les plus utilisés et les plus faciles à mettre en œuvre pour une modélisation rapide du procédé RTM.

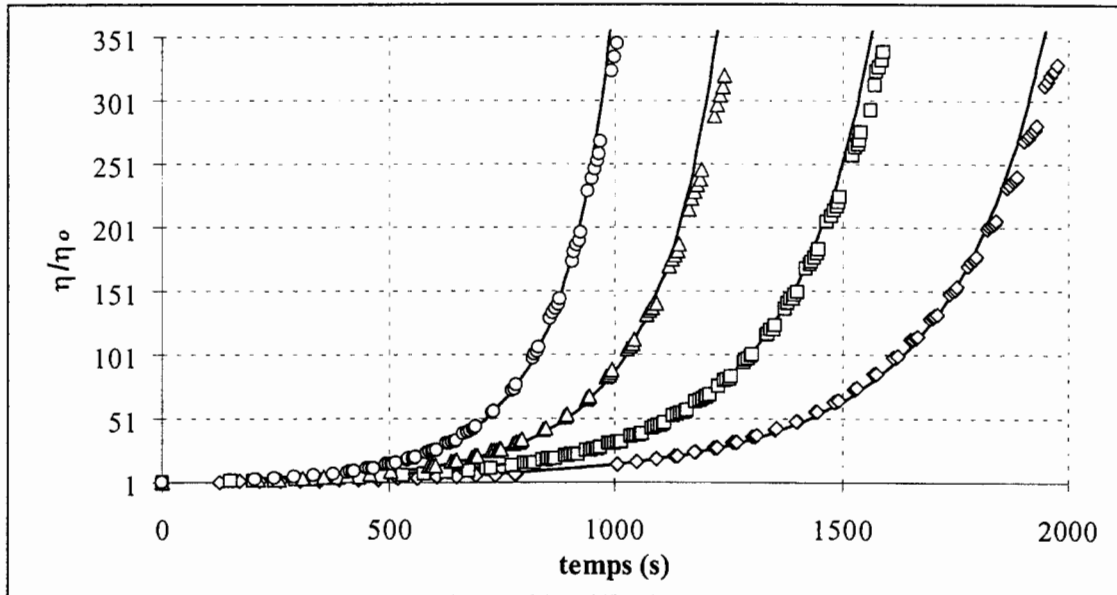
Nous avons par exemple pu modéliser avec succès le comportement chimiorhéologique d'un système cyanate ester dans les conditions du procédé RTM (Leroy, 2000) à l'aide du modèle suivant :

$$\eta(\alpha, T) = \eta_0 \cdot \left[ \frac{1+2\alpha}{1-2\alpha} \right]^{-n}$$

Équation 11

Où :  $\eta_0$  est donnée par l'équation de DOOLITTLE et n un exposant ajustable.

La figure 12 montre la simulation de l'évolution du rapport  $(\eta/\eta_0)$  lors d'expériences de rhéométrie cône plan isothermes.



**Figure 12 :** Simulation de la viscosité en cours de réaction pour différentes températures : expériences (  $\diamond$ :120 °C ,  $\square$ :125 °C ,  $\Delta$ : 130 °C et  $\circ$  : 135 °C) et — : simulations.

Néanmoins, si l'on souhaite aller plus loin dans la compréhension de la relation entre avancement de la réaction et comportement rhéologique, l'utilisation d'une seconde catégorie de loi de comportement semble plus intéressante. Cette dernière se base en effet sur une extension de l'équation de DOOLITTLE qui permet d'effectuer une analyse isoconversionnelle du comportement rhéologique à partir d'expériences de rhéométrie dynamique en balayage de température :

$$\ln \left[ \frac{\eta(T, \alpha)}{\eta_0(T_g)} \right] = \frac{C_1(\alpha) \cdot [T - T_g(\alpha)]}{C_2(\alpha) + [T - T_g(\alpha)]}$$

Équation 12

Où les paramètres  $C_1$  ,  $C_2$  et la température de transition vitreuse  $T_g$  sont des fonctions du degré de conversion. La viscosité à  $T_g$  étant considérée comme constante :

Le principal problème de cette expression réside dans la détermination des lois d'évolution de  $C_1$  et  $C_2$  pour laquelle il n'existe aucune base théorique. Cependant, si on effectue un balayage de température à une certaine vitesse de montée en température  $\beta$ .

En effectuant en parallèle une expérience similaire en Calorimétrie Différentielle à Balayage, on dispose alors de l'évolution de la viscosité  $\eta$  en fonction du degré de conversion  $\alpha$  et de la température  $T$ .

En répétant cette opération pour un certain nombre de vitesses de montée en température, on obtient l'évolution de la viscosité avec la température  $\eta(T)$  à chaque degré de conversion considéré. On peut alors finalement chercher à déterminer expérimentalement l'évolution des paramètres  $C1$ ,  $C2$  avec le degré de conversion et obtenir ainsi des informations sur l'effet de la réaction sur le comportement rhéologique.

Par ailleurs, on notera que cette procédure pourrait aussi être appliquée lors d'une étude en spectrométrie diélectrique dont l'intérêt est de permettre le suivi in situ du comportement rhéologique à travers l'évolution de la conductivité ionique du polymère (Leroy, 2000).

## CONCLUSION

Au cours de ce travail, nous avons étudié deux paramètres matériau clé pour la modélisation du procédé RTM : la perméabilité des renforts et la viscosité de la matrice therm durcissable.

L'étude de deux techniques de mesure de perméabilité a permis leur optimisation et la réalisation de deux bancs de mesure permettant la caractérisation complète du tenseur de perméabilité. Chacun de ces dispositifs a fait l'objet de tests préliminaires, qui semble montrer leur fiabilité. Toutefois, des tests complémentaires, actuellement en cours, restent nécessaires et seront présentés dans une publication ultérieure.

Parallèlement, l'étude du problème de la modélisation du comportement chimiorhéologique des polymères therm durcissables a été l'occasion d'une part de déterminer les modèles existants les mieux adaptés à la modélisation du procédé RTM, et d'autre part de proposer des pistes de travail pour une meilleure compréhension de la relation entre l'avancement de la réaction et l'évolution du comportement rhéologique.

## BIBLIOGRAPHIE

- ADAMS K.L., MILLER B., REBENFELD L.** Radial penetration of a viscous liquid into a planar anisotropic porous medium. *International Journal of Multiphase Flow*, 1988, Vol 14, n° 2, p. 203-215.
- ADVANI S.G., BRUSCHKE M. V., PARNAS R.S.** Resin transfer molding flow phenomena in polymeric composites. *Flow and Rheology in Polymer Composites Manufacturing*. Edited by S.G. Advani. Amsterdam : Elsevier, 1994, p. 465-515.
- CARTER E.J., FELL A.W., GRIFFIN P.R. SUMMERSCALES J.** Data validation procedures for the automated determination of the two-dimensional permeability tensor of a fabric reinforcement. *Composites: Part A*, 1996, Vol 27A, p. 255-261.
- CHAN A.W., HWANG S.-T.** Anisotropic in-plane permeability of fabric media. *Polymer Engineering and Science*, 1991, Vol 31, n°16, p. 1233-1239.
- FONTANA Q.P.V.** Viscosity: Thermal history treatment in resin transfer molding process molding. *Composites: Part A*, 1998, Vol 29A, p. 153-158.
- GOULEY G.** *Etude des écoulements dans les procédés d'injection de résine sur renfort*. Thèse de Doctorat : Université des Sciences et Technologies de Lille Flandres Artois, 1995, 170 p.
- HALLEY P.J., MACKAY M.E.** Chemorheology of thermosets: An overview. *Polymer Engineering and Science*, 1996, Vol 36, N° 5, p. 593-609.
- LEROY E.** *Etude et modélisation des propriétés de systèmes réactifs thermodurcissables en cours de réticulation*. Thèse de doctorat : Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, soutenance prévue novembre 2000.
- MILLER B., CLARK D.B.** Liquid transport through fabrics; wetting and steady-state flow. Part I : A new experimental approach. *Textile Research Journal*, 1978, Vol 3, p. 150-155.
- TREVINO L., RUPEL K., YOUNG W.B., LIOU M.J., LEE L.J.** Analysis of resin injection molding in Molds with preplaced fiber mats. I: permeability and compressibility measurements. *Polymer Composites*, 1991, Vol 12, n° 1, p. 20-29.
- UM M.-K., LEE S.-K.** A study on the determination of in-plane permeability of fiber preforms. *Polymer Composites*, 1999, Vol 20, n° 6, p. 771-779.
- WEITZENBOCK J.R., SHENOI R.A., WILSON P.A.** Radial flow permeability measurement. Part B: Application. *Composites: Part A*, 1999, Vol 30, p. 797-813.

## **Influence du mode opératoire sur les caractéristiques rhéologiques des gels de Carbopols**

**L. Baudonnet<sup>1</sup>, P. Michaud<sup>1</sup>, J-L. Grossiord<sup>2</sup>, F. Rodriguez<sup>1</sup>**

1- Laboratoire de Pharmacie Galénique - Faculté des Sciences Pharmaceutiques - 35, chemin des Maraîchers - 31062 Toulouse

2- Laboratoire de Physique Pharmaceutique – UMR 8612- Paris XI – rue J-B. Clément – 92296 Châtenay-Malabry Cedex

### **Résumé**

Les gels de Carbopol sont couramment utilisés dans la formulation des gels à usage pharmaceutique. Le procédé de fabrication de ce type de gel comprend deux étapes : la dispersion de la poudre et la neutralisation de la suspension. Notre étude rhéologique des gels permet de suivre l'influence de la vitesse et du temps d'agitation, lors de l'étape de dispersion. Une étude préliminaire a montré que l'étape de neutralisation doit se limiter à une homogénéisation, avec un faible cisaillement du mélange. Les résultats rhéologiques obtenus permettent de classer les Carbopols en trois groupes en fonction de leur comportement vis à vis du cisaillement appliqué lors de leur préparation. Le but de ce travail est de déterminer pour chaque gel de Carbopol les vitesses et les temps d'agitation optimum pour une meilleure préparation.

### **Abstract**

Carbopol gels are used for pharmaceutical formulations. These gels were prepared by a two steps process: the powder dispersion and the neutralisation by Sodium Hydroxide. The rheological characterisation allowed to determinate the stress influence on the gels properties during the dispersion step. A preliminary study has shown that the neutralisation step was only a homogenization stage with a weak stress. The rheological results allowed to separate Carbopol gels into three groups. This study allowed to determinate for each Carbopol gels, an optimum stress and time of agitation from a best formulation.

### **Introduction**

Les gels de Carbopol sont des polymères d'acide acrylique. Ces polymères synthétiques sont couramment utilisés dans la formulation de gels à usage pharmaceutique. Depuis 1998, l'Agence du Médicament (AFSSAPS) a imposé une norme sur les solvants résiduels pour les produits contenant du benzène. La teneur en benzène doit être inférieure à 2 ppm. Les anciens Carbopols comme le C 940, le C 934 et le C 941, qui présentent des teneurs

---

Mots clés : gels, carbomères, procédé de fabrication, propriétés rhéologiques

en benzène plus importantes, ont été remplacés par une nouvelle gamme de produits sensée présenter des viscosités équivalentes [1].

Ces nouveaux Carbopols diffèrent par le solvant utilisé lors de leur synthèse et par leur degré de réticulation. Le procédé de fabrication de ces produits se décompose en deux étapes : la dispersion de la poudre suivie de la neutralisation du mélange.

Cette étude porte sur l'influence de la vitesse et du temps d'agitation sur les caractéristiques rhéologiques des gels. L'étude du procédé permettra de déterminer le comportement de chaque Carbopol en fonction des vitesses utilisées au cours de la formulation par rapport à la gamme de viscosité choisie.

## I. Matériels et Méthodes

### 1. Les produits étudiés: les carbomères

Les gels de carbomères sont des polymères d'acide acrylique réticulés soit par des allyles sucrose soit par des allyles pentaerythritol [2]. La dispersion de ces poudres dans l'eau nécessite une agitation importante et soutenue. Il est conseillé de travailler avec des vitesses de 800 à 1200 tr/min pendant 20 minutes avec une système d'agitation type hélice ou pale. Une fois la poudre dispersée, on obtient un mélange de faible viscosité et de pH compris entre 2,7 et 3,5 pour une concentration de 0,5 % de Carbopol [3].

C'est au moyen de l'étape de neutralisation que l'on obtient la consistance de gel par déploiement des chaînes du polymère. La neutralisation ionise la chaîne du polymère, ce qui génère des charges négatives. La répulsion de ces charges négatives cause l'expansion de la molécule et l'augmentation de la viscosité du mélange.

L'ensemble des gels de Carbopol est réalisé suivant le même procédé. Au cours de cette étude, les gels de Carbopol classés par gamme de viscosité ont été étudiés (tableau 1).

| Groupe '940'                                    | Groupe '934'                                    | Groupe '941'                                   | Pemulen (copolymère)                             |
|---|---|--|--|
| C 940<br>(B)                                    | C 934 P<br>(B)                                  | C 941<br>(B)                                   |  |
| C 980<br>(C/AE)                                 | C 974P<br>(AE)                                  | C 981<br>(C/AE)                                | TR 1<br>(C/AE)                                   |
| C 2984 0,5%<br>(C/AE)                           | C 5984<br>(C/AE)                                | ETD 2050 (C/AE)                                | TR 2<br>(C/AE)                                   |
| ETD 2001<br>(C/AE)                              |   | C 2984 0,2%<br>(C/AE)                          |  |
| $40 \cdot 10^3 < \eta < 65 \cdot 10^3$<br>mPa.s | $25 \cdot 10^3 < \eta < 45 \cdot 10^3$<br>mPa.s | $2 \cdot 10^3 < \eta < 15 \cdot 10^3$<br>mPa.s | $1,7 \cdot 10^3 < \eta < 15 \cdot 10^3$<br>mPa.s |

Tableau 1 : Présentation de l'ensemble des carbomères étudiés, des solvants utilisés lors de leur synthèse et leur gamme de viscosité.

Les solvants : B : Benzène  
 AE : Acétate d'éthyle  
 C : Cyclohexane

Tous les gels sont réalisés à la concentration de 0,5 % sauf le Carbopol 2984 qui est réalisé à 0,5 et à 0,2 % .

## 2. Le matériel utilisé

Un mélangeur Multimix permet de travailler avec un volume de 5 litres au maximum. Il utilise deux systèmes d'agitation, une turbine et une ancre. La vitesse d'agitation de la turbine varie de 495 à 3500 tr/min et l'ancre tourne au maximum à 75 tr/min.

Au cours de cette étude, les gels sont réalisés sous vide. Les gels sont obtenus à partir de 3 litres d'eau distillée.

## 3. Les contrôles effectués

### a. *Etude rhéologique*

Les caractéristiques rhéologiques sont obtenues avec un rhéomètre RhéoStress 75 (Haake). La géométrie du mobile utilisé pour l'ensemble des mesures est une géométrie cône-plan (diamètre 60 mm, angle 1°). Les mesures effectuées sont :

- des cycles d'écoulement avec des mesures à l'équilibre afin de caractériser:
  - le seuil d'écoulement  $\tau_0$ ,
  - la viscosité à des vitesses de cisaillement de 200, 1000 et 2000  $s^{-1}$
  - la thixotropie.
- des balayages contrainte en mode dynamique à 1 Hz afin de déterminer le module complexe  $G^*$  en régime linéaire et la contrainte critique qui définit le maximum du module visqueux. [4,5]

### b. *Mesures de pénétrométrie*

Grâce à l'analyseur de texture (LFRA, Stevens), on réalise des cycles charge-décharge. Le mobile utilisé est un cylindre de 24 mm de diamètre, l'enfoncement est de 10 mm et la vitesse de 2 mm/s. Cette mesure permet de déterminer:

- la force maximale de pénétration du mobile dans le gel que l'on relie à la consistance du gel
- la force minimale et la surface de remontée que l'on pourra relier à l'adhésivité et à l'effet filant du produit.

## 4. Etude de l'influence du procédé

### a. *Etape de dispersion de la poudre*

Les vitesses d'agitation choisies sont différentes en fonction des gels de Carbopol.

$\alpha$ ) Pour les gels les plus consistants : C940, C934, C980, ETD 2001, C2984 à 0,5 %, C974P et C5984, les vitesses d'agitation considérées sont 1000, 1500, 2000 et 3000 tr/min imposées pendant 5, 10 ou 15 minutes.

$\beta$ ) Pour les gels les moins consistants : C941, ETD 2050, C2984 à 0,2 %, C981 et les Pemulen TR1 et TR2, deux vitesses d'agitation sont imposées 1000 et 3000 tr/min pendant 10 minutes.

*b. Etape de neutralisation du mélange*

Elle est étudiée sur le Carbopol 974P. Après avoir réalisé l'étape de dispersion à 1500 tr/min jusqu'au mouillage complet de la poudre, l'étape de neutralisation est réalisée à plusieurs vitesses : 75, 495, 1000, 2000 et 3000 tr/min pendant 5 minutes.

## II. Résultats

### 1. Etude préliminaire

*a. Etude de reproductibilité des conditions opératoires*

Trois gels ont été réalisés dans les mêmes conditions opératoires sur le mélangeur Multimix, et leur caractérisation a permis de constater que les variations de viscosité mesurées à trois vitesses de cisaillement différentes (200, 1000 et 2000 s<sup>-1</sup>) restent inférieures à 2 %.

Les viscosités des trois gels de Carbopol 974P sont présentés dans le tableau 2.

| Procédés réalisés   | $\dot{\gamma} = 200 \text{ s}^{-1}$ | $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ | $\dot{\gamma} = 2000 \text{ s}^{-1}$ |
|---|-------------------------------------|--------------------------------------|--------------------------------------|
| Dispersion: 1000 tr/min 10 min<br>Neutralisation: 495 tr/min 5 min  | 1.57 Pa.s                           | 0.529 Pa.s                           | 0.332 Pa.s                           |
| Dispersion: 1000 tr/min 10 min<br>Neutralisation : 495 tr/min 5 min | 1.58 Pa.s                           | 0.523 Pa.s                           | 0.337 Pa.s                           |
| Dispersion: 1000 tr/min 10 min<br>Neutralisation : 495 tr/min 5 min | 1.56 Pa.s                           | 0.520 Pa.s                           | 0.330 Pa.s                           |

Tableau 2 : Résultats des viscosités pour l'étude de reproductibilité sur le C 974P

*b. Stabilité des gels*

Afin de pouvoir comparer l'ensemble des résultats obtenus, nous avons déterminé le temps nécessaire au mûrissement d'un gel de Carbopol 974P. La caractérisation dure 7 jours : les résultats de l'étude de viscosité sont illustrés par la figure 3 :



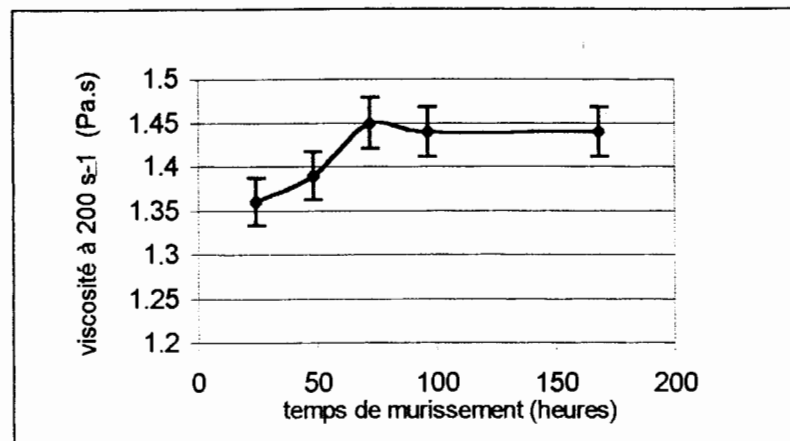


Figure 3 : Evolution de la viscosité à 200 s<sup>-1</sup> en fonction du temps de mûrissement

On observe qu'après 72 heures, on ne note plus de variations des propriétés du gel. Pour prendre en compte une éventuelle modification du temps de mûrissement avec la vitesse d'agitation, les produits sont caractérisés après 7 jours de mise en stabilité à 25 °C.

*c. Etude de la neutralisation sur le C 974P*

Afin d'étudier l'influence de la vitesse d'agitation au cours de l'étape de neutralisation, une dispersion a été réalisée à 1500 tr/min pour mouiller l'ensemble de la poudre du Carbopol 974P. L'étape de neutralisation par la soude à 18 % (m/V) est réalisée à plusieurs vitesses, allant de 75 à 3000 tr/min appliquées pendant 5 minutes.

L'étude de la viscosité pour une vitesse de cisaillement de 200 s<sup>-1</sup> est résumée par la figure 4

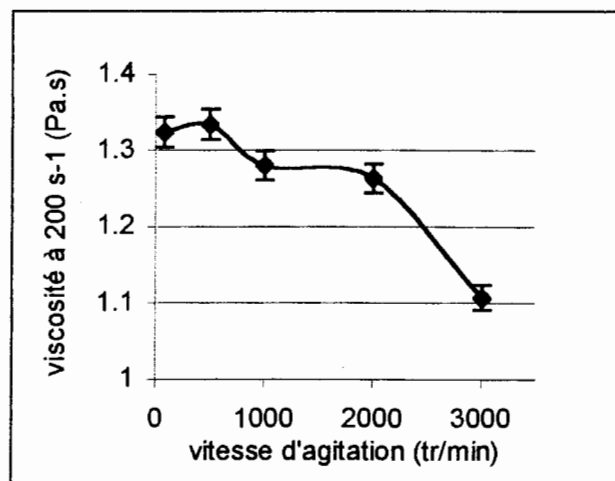


Figure 4 : Evolution de la viscosité à 200 s<sup>-1</sup> en fonction de la vitesse d'agitation lors de l'étape de neutralisation

L'augmentation de la vitesse d'agitation au cours de l'étape de neutralisation au delà de 500 tr/min n'est pas envisageable si l'on veut conserver les propriétés rhéologiques du gel. A partir de 1000 tr/min même pendant 5 minutes d'application, la viscosité diminue et pour une vitesse de 3000 tr/min une diminution de 25 % de la viscosité a pu être constatée. Pour la suite de nos travaux, afin de ne pas déstructurer le gel, l'étape de neutralisation est réalisée à une vitesse de 495 tr/min pendant 5 minutes.

## 2. Etude de l'étape de dispersion

### a. Etude réalisée sur le Carbopol 974P

Sept gels ont été réalisés avec les procédés de fabrication suivants:

- 1000 tr/min pendant 5 et 15 minutes
- 1500 tr/min pendant 5 et 15 minutes
- 2000 tr/min pendant 5 et 15 minutes
- 3000 tr/min pendant 5 minutes

L'analyse rhéologique montre une variation significative des différentes grandeurs rhéologiques d'écoulement des produits lorsque la vitesse d'agitation augmente. (figure 5)

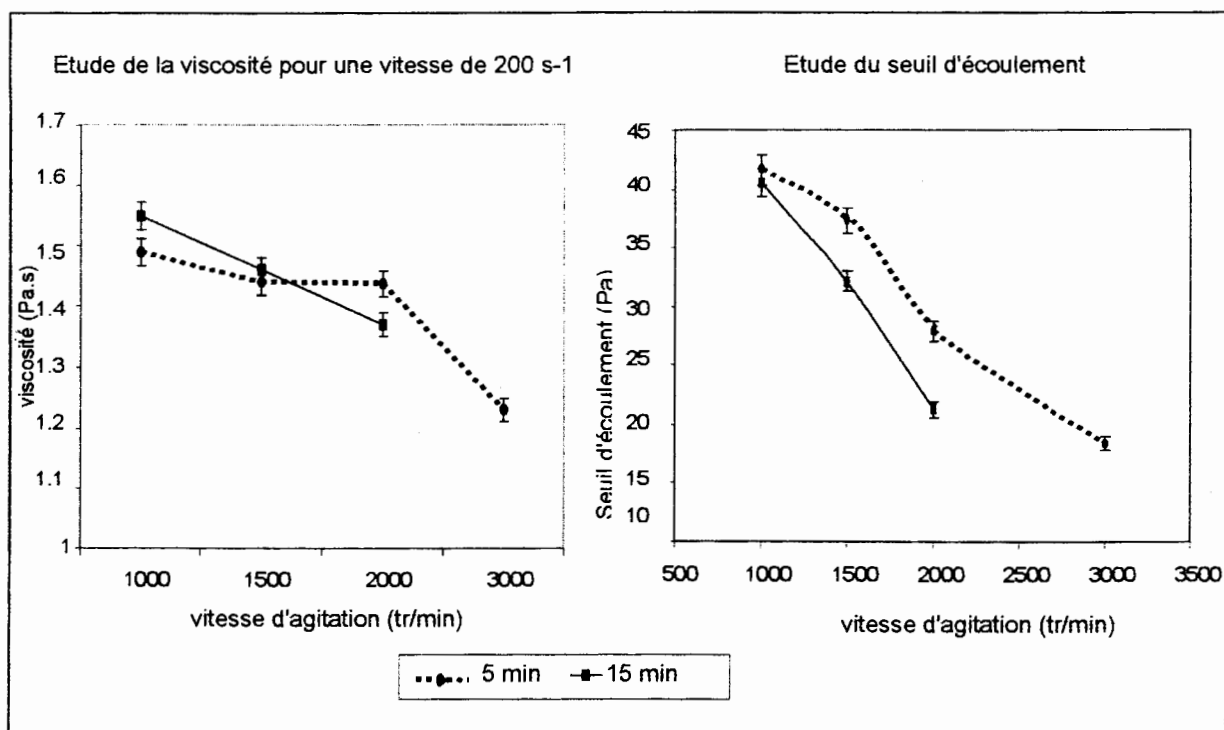


Figure 5: Influence de l'augmentation de la vitesse et du temps d'agitation sur la viscosité mesurée à 200 s<sup>-1</sup> et sur le seuil d'écoulement

A partir de ces résultats, nous avons constaté une influence non négligeable de l'augmentation de la vitesse d'agitation sur les caractéristiques rhéologiques du C974P.

Pour déterminer, si une augmentation importante de la vitesse d'agitation modifie les propriétés rhéologiques des autres gels de Carbopol, nous nous sommes fixés les conditions opératoires suivantes:

- une vitesse de 1000 tr/min et un temps d'agitation de 10 minutes, nécessaire pour disperser la totalité de la poudre de carbomère.
- une vitesse de 3000 tr/min pendant 5 minutes, procédé avec lequel on constate une diminution des propriétés rhéologiques du C974P.

Ces deux procédés de fabrication seront appliqués à l'ensemble de gels présentés dans le tableau 1.

*b. Etude de l'influence de la vitesse d'agitation sur l'ensemble des Carbopols*

Pour l'ensemble des gels de Carbopol, une modification du procédé de fabrication (augmentation de la vitesse de 1000 à 3000 tr/min) se traduit par une diminution plus ou moins importante de la viscosité à  $200 \text{ s}^{-1}$  et du seuil d'écoulement.(tableau 2)

| Carbomère                 |          | C940 | C980 | ETD 2001 | C2984 0,5 % | C934 | C974 | C5984 | C941 | C981 | ETD 2050 | C2984 0,2 % | TR1 | TR2 |
|---------------------------|----------|------|------|----------|-------------|------|------|-------|------|------|----------|-------------|-----|-----|
| Variation de la viscosité | $\eta$   | 20%  | 17%  | 2%       | 14%         | 5%   | 21%  | 24%   | 48%  | 42%  | 45%      | 24%         | 13% | 49% |
| Variation du seuil        | $\tau_0$ | 17%  | 6%   | 13%      | 18 %        | 3%   | 54%  | 2%    | 75%  | 41%  | 25%      | 39%         | 2%  | 14% |

Tableau 2: Diminution relative de la viscosité  $\eta$  à  $200 \text{ s}^{-1}$  et du seuil d'écoulement  $\tau_0$  entre deux procédés de fabrication (1000 et 3000 tr/min)

L'étude en mode dynamique est réalisée à 1 Hz. Le balayage contrainte est réalisé entre 0,5 et 200 Pa. On peut noter une diminution de la valeur du plateau de  $G^*$  ainsi que de la contrainte critique  $\tau_c$  qui définit le maximum de  $G''$  lors de l'augmentation de la vitesse d'agitation. (figure 6 et tableau 3)

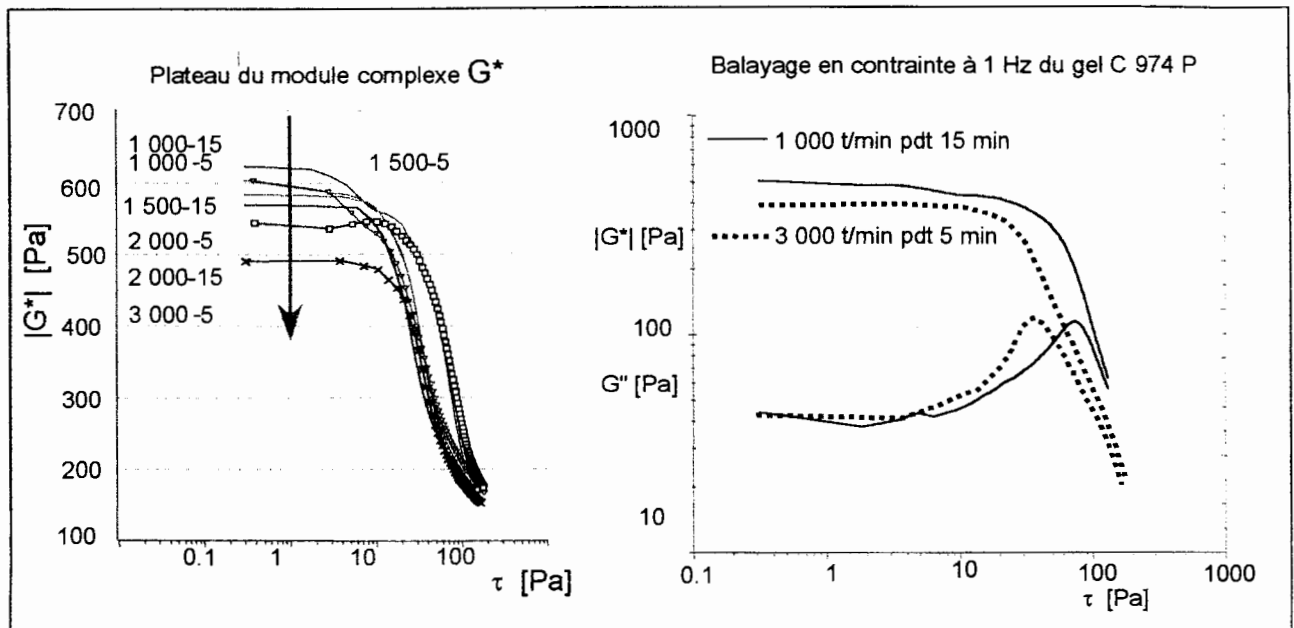


Figure 6: Résultats de l'étude en mode dynamique pour le Carbopol 974P

| Carbomère                  | C940 | C980 | ETD 2001 | C2984 0,5 % | C934 | C974 | C5984 | C941 | C981 | ETD 2050 | C2984 0,2 % | TR 1 | TR 2 |
|----------------------------|------|------|----------|-------------|------|------|-------|------|------|----------|-------------|------|------|
| Variation du Plateau $G^*$ | 17%  | 16%  | 7%       | 12%         | 13%  | 29%  | 13%   | 36%  | 32%  | 51%      | 33%         | 5%   | 35%  |
| Variation du $\tau_c$      | 25%  | 15%  | 20%      | 22%         | 13%  | 26%  | 24%   | 45%  | 42%  | 46%      | 40%         | 3%   | 66%  |

Tableau 3: Variations relatives des valeurs de  $G^*$  plateau et de  $\tau_c$  pour deux vitesses d'agitation, 1000 et 3000 tr/min

L'analyseur de texture nous permet d'aboutir aux mêmes conclusions sur l'influence de la vitesse d'agitation sur la texture des gels, mais les différences sont moins importantes (tableau 4). Cette technique d'analyse plus rapide permet quand même de différencier les procédés de fabrication utilisés lorsque les vitesses d'agitation sont suffisamment importantes pour différencier les produits.

| Carbomère                                   | C940 | C980 | ETD<br>2001 | C2984<br>0,5 % | C934 | C974 | C5984 | C941 | Ç981 | ETD<br>2050 | C2984<br>0,2 % | TR 1 | TR 2 |
|---|------|------|-------------|----------------|------|------|-------|------|------|-------------|----------------|------|------|
| Variation de<br>la<br>F max                 | 18 % | 15 % | 8 %         | 18 %           | 14 % | 15 % | 12 %  | 13 % | 17 % | 20 %        | 10 %           | 5 %  | 14 % |
| Variation de<br>la<br>Surface<br>inférieure | 16 % | 10 % | 16 %        | 12 %           | 14 % | 15 % | 7 %   | 23 % | 23 % | 32 %        | 15 %           | 9 %  | 77 % |

Tableau 4: Variations de Fmax et de la surface inférieure du cycle charge-décharge pour deux vitesses d'agitation, 1000 et 3000 tr/min

### III. Discussion

Pour rechercher si des corrélations existent entre les différents résultats obtenus au cours de ces travaux, une Analyse en Composante Principale (ACP) sur l'ensemble des caractéristiques des produits étudiés a été réalisée.

Cette analyse des résultats nous permet de comparer l'ensemble des carbomères par rapport à l'évolution de leurs caractéristiques au cours de l'augmentation de la vitesse d'agitation.

Cette ACP est réalisée au moyen des écarts en pourcentage entre les caractéristiques rhéologiques obtenus pour les vitesses d'agitation de 1000 et 3000 tr/min. Les variables étudiées sont donc :  $(\Delta F_{max}(1000-3000)/F_{max}1000)$ ,  $(\Delta F_0(1000-3000)/F_01000)$  au moyen du pénétromètre,  $(\Delta \text{seuil}(1000-3000)/\text{seuil}1000)$ ,  $(\Delta \text{visco}(1000-3000))/\text{visco}1000)$ ,  $(\Delta G^*(1000-3000)/G^*1000)$ ,  $(\Delta G'(1000-3000)/G'1000)$ ,  $(\Delta \text{delta}(1000-3000)/\text{delta}1000)$  au moyen du rhéomètre.

Cette ACP nous permet de représenter chaque gel par un seul point sur un plan défini par les caractéristiques rhéologiques déterminées au cours de ces travaux.

La réalisation de l'ACP, nous montre que les variables viscosité, seuil, plateau de  $G^*$  et plateau de  $G'$  sont corrélées et nous permet de représenter l'ensemble des préparations réalisées sur le plan F1-F2. Ce plan représente 72,1% d'information. (figure 7)

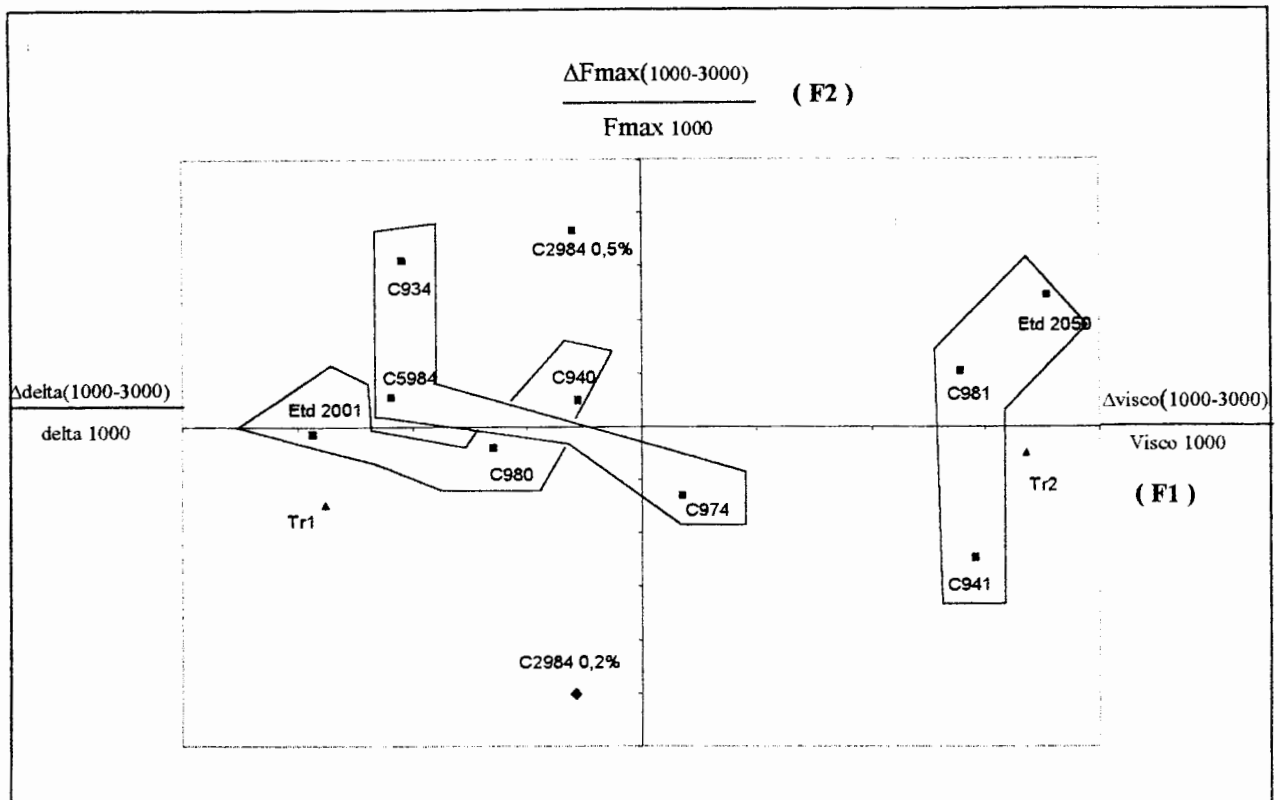


Figure 7 : Représentation sur un plan F1-F2 de l'influence de l'augmentation de la vitesse d'agitation sur les caractéristiques rhéologiques des Carbomères.

En conservant la classification des carbomères par rapport aux viscosités des anciens et des nouveaux carbomères, on peut les classer en trois groupes.

Le groupe du Carbopol 941 (C941, ETD 2050 et C981), est très influencé par l'augmentation de la vitesse d'agitation au niveau de la viscosité (F1). Par rapport à cette caractéristique le groupe présente un comportement homogène face à l'augmentation de la vitesse d'agitation. C'est le gel ETD 2050 qui montre la plus forte variation de la force maximale (Fmax, analyseur de texture), au sein de ce groupe.

Le groupe du Carbopol 934, (C934, C5984 et C974P) est représenté par trois produits qui ne réagissent pas de façon homogène face au cisaillement lors de leur fabrication. Les caractéristiques rhéologiques (viscosité, seuil axe F1) du C974P diminuent fortement avec l'augmentation de la vitesse d'agitation, alors que le C5984 et le C934 sont moins influencés. Dans ce groupe, l'augmentation de la vitesse d'agitation aboutit à des résultats différents. Lors de leurs utilisations dans une formulation, l'optimisation du procédé de fabrication semble indispensable en fonction du carbomère choisi.

Le groupe du Carbopol 940 (C940, ETD 2001, C2984 0,5% et C980) est dans l'ensemble le moins influencé par l'augmentation importante de la vitesse d'agitation. Le C2984 à 0,5% et le C940 sont les plus sensibles au sein de ce groupe, mais les diminutions de leurs caractéristiques restent inférieure à celles du C974P et au groupe C941. Dans ce groupe, le

produit le moins influencé par l'augmentation de la vitesse d'agitation, surtout au niveau de sa viscosité, est l'ETD 2001.

Le groupe des Pemulens TR1 et TR2, est le plus hétérogène par rapport à l'augmentation de la vitesse d'agitation. Le TR2, très influencé se rapproche du comportement du groupe C941. Le TR1 comme l'ETD 2001, est très faiblement influencé par les modifications du procédé de fabrication.

Ces deux copolymères, synthétisés dans les mêmes solvants, diffèrent par leurs degrés de réticulation, ce qui semble montrer qu'un degré de réticulation important rend le produit moins fragile face à une agitation importante.

La variation de la concentration du C2984 entre 0,2 et 0,5%, montre que l'augmentation de la vitesse d'agitation fait diminuer la viscosité des gels dans la même proportion. (même position par rapport à l'axe F1). Les différences entre ces deux gels sont mis en évidence par les résultats de l'analyseur de texture. (axe F2).

#### **IV. Conclusions**

Ce travail a permis de paramétrer les conditions de réalisation d'un gel à base de nouveaux ou d'anciens carbomères.

Nous avons montré que chaque carbomère est sensible à l'augmentation de la vitesse d'agitation au cours de leur fabrication. Cependant pour des carbomères de même viscosité, la diminution de leurs caractéristiques peut être très différente.

Au vu des résultats de l'influence de l'augmentation de la vitesse d'agitation sur les caractéristiques rhéologiques des carbomères, on ne peut pas donner systématiquement comme équivalent les carbomères de même viscosité.

La comparaison des anciens et des nouveaux carbomères, nous montre que ces produits de même viscosité n'évoluent pas de la même manière face à l'augmentation du cisaillement, à l'image du Carbopol 934 et du Carbopol 974P.

Il est donc important lors de l'utilisation d'un carbomère dans une formulation d'étudier l'influence des vitesses d'agitation utilisées dans le procédé de fabrication de la formule si l'on veut conserver les mêmes normes rhéologiques pour le produit fini.

#### **Bibliographie**

[1]- ARNAUD P., GROSSIORD J.L, JOACHIM J., KETELERS A., LOVERA V., LANQUETIN M., MALIBEAU N., MARTINI M.C., MARTY J.P., MICHAUD P., PICCERELLE P., RODRIGUEZ F., SEILLER M., ZUBER M., Les Carbomères: remplacement et évaluation de la formulation, rapport d'une commission SFSTP, S.T.P. Pharma Pratiques, 1998, 8, 263-288

[2]- AMJAD Z., HEMKER W.J., MAIDEN C.A., ROUSE W.M., SAUER C.E., Carbomer resins: Past, Present an Future, Cosmet.& Toiletries, 1992, 107, 81-86.

[3]- Documentation technique B.F. GOODRICH, "Carbopol, Polymers for pharmaceutical applications", bulletin 1, 1996

[4]- GROSSIORD J.L., SEILLER M., PUISIEUX F., Apport des analyses rhéologiques dans l'étude d'émulsions multiples H/L/H, Rheol. Acta, 1993, 32, 168-180

[5]- RAYNAL S., ALDACOURROU B., Mesure du seuil d'écoulement de produits émulsionnés fluides, Les Cahiers de Rhéologie, GFR Nantes ,1997, Vol. 15, numéro 4, 80-89



# Écoulement généré par le lâcher instantané d'un barrage retenant un fluide viscoplastique

K. Debiane, J.M. Piau

Laboratoire de Rhéologie UMR 5520 (UJF-INPG- CNRS) BP 53  
38041 Grenoble Cedex 9

## Résumé

Le travail présenté ici concerne une classe particulière d'écoulements à surface libre qui se produisent dans la nature (laves torrentielles) et dans l'industrie (consistométrie). Nous traitons finalement un problème de rupture de barrage avec un fluide synthétique qui suit le modèle d'Herschel-Bulkley. Nous présentons d'une part une étude théorique basée sur le nouveau modèle de Piau (1996), d'autre part, une expérimentation réalisée dans un canal prismatique de section rectangulaire. L'évolution en fonction du temps du front d'onde est mesurée à l'aide d'une caméra rapide, tandis que la mesure des profondeurs de l'écoulement est réalisée grâce à un système ultrasonique et une jauge de profondeur à affichage digital. L'intérêt de ces méthodes est de permettre des mesures sans contact avec le liquide, et une bonne précision. Dans ces conditions, il est possible de vérifier qu'on réalise un bon accord entre la théorie et l'expérience.

## Abstract

The present work deals with a particular class of free surface flows that occurs in nature (debris flows) and industry as well (Consistometers). Finally, the dam-break problem is studied for the case of a Herschel-Bulkley model. A theoretical study based on Piau's model (1996) is presented, together with experimental data obtained for a transparent gel flowing in a prismatic channel of rectangular shape. The wave front evaluation is located using a fast camera, while flow depths are measured with a ultrasonic system and a digital display depth gauge. The interest of these methods is to avoid any contact with the liquid surface while affording a good precision. In these conditions, it is possible to check that a good agreement between theory and experimental data is obtained.

## 1 Introduction

Notre objectif initial est de contribuer à la modélisation des écoulements naturels de boues. Ces mouvements gravitaires peuvent en particulier être observés dans les régions montagneuses après de longues ou de fortes pluies. Des masses importantes d'eau boueuse s'écoulent dans le lit d'un torrent. Si elles dévalent les versants, leurs conséquences sont catastrophiques. Ce problème naturel n'est pas purement théorique. En mai 1998, des pluies diluviennes se sont abattues sur les collines de la ville de Sarno, en Italie, suivie aussitôt après par deux coulées de boues dévalant les versants, entraînant derrière elles une centaine de morts. A la mi-décembre 1999, après une longue pluie, des coulées de boues dévalaient la région de Vargas au Venezuela laissant 200.000 sans abris et plus de 30.000 morts.

Plusieurs travaux relatifs à ce problème ont déjà été réalisés au Laboratoire de Rhéologie. La thèse de Coussot (1992) caractérise le comportement du matériau, et confirme la

pertinence de la loi d'Herschel-Bulkley. La thèse d'Ayadi (1996) étudie les écoulements à surface libre avec des boues argileuses thixotropes. La thèse de Debiane 2000 (le travail présenté ici est un extrait de la thèse) étudie les écoulements laminaires à surface libre dans un canal pour des milieux visqueux ou viscoplastiques.

Nous présentons ici des résultats obtenus dans le problème heuristique de rupture de barrage avec un gel synthétique viscoplastique. Les résultats sont pertinents à la fois en consistométrie, et pour la caractérisation des écoulements de boues et vases. Le gel est obtenu à partir de la résine Carbopol 940 de B.F. Goodrich Company. En solution dans l'eau et après neutralisation à l'aide d'une base minérale (Soude), une ionisation de la résine conduit à un épaissement instantané. La consistance du produit dépend fortement de la concentration et de pH. La caractérisation du gel de Carbopol, à l'aide de deux rhéomètres (Carri-Med CSL100 et Weissenberg), selon les méthodes mises au point par Magnin & Piau (1987-1990), indique la loi de comportement du fluide qui suit le modèle d'Herschel-Bulkley (Fig. 1). Ce modèle s'écrit en cisaillement simple, comme suit :

$$\begin{aligned} \tau &= s + k|\dot{\gamma}|^n & \text{si } \tau \geq s \\ \dot{\gamma} &= 0 & \text{si } \tau < s \end{aligned} \quad (1)$$

où  $s$  est le seuil de contrainte,  $k$  est la consistance du fluide,  $n$  est l'indice de rhéofluidification, et  $\tau$  et  $\dot{\gamma}$  sont la contrainte tangentielle et le gradient de vitesse, respectivement. Les trois paramètres rhéologiques ( $s$ ,  $k$ ,  $n$ ) sont obtenues par ajustement des mesures rhéométriques avec la courbe théorique. La précision sur les mesures rhéométriques est d'environ 20%.

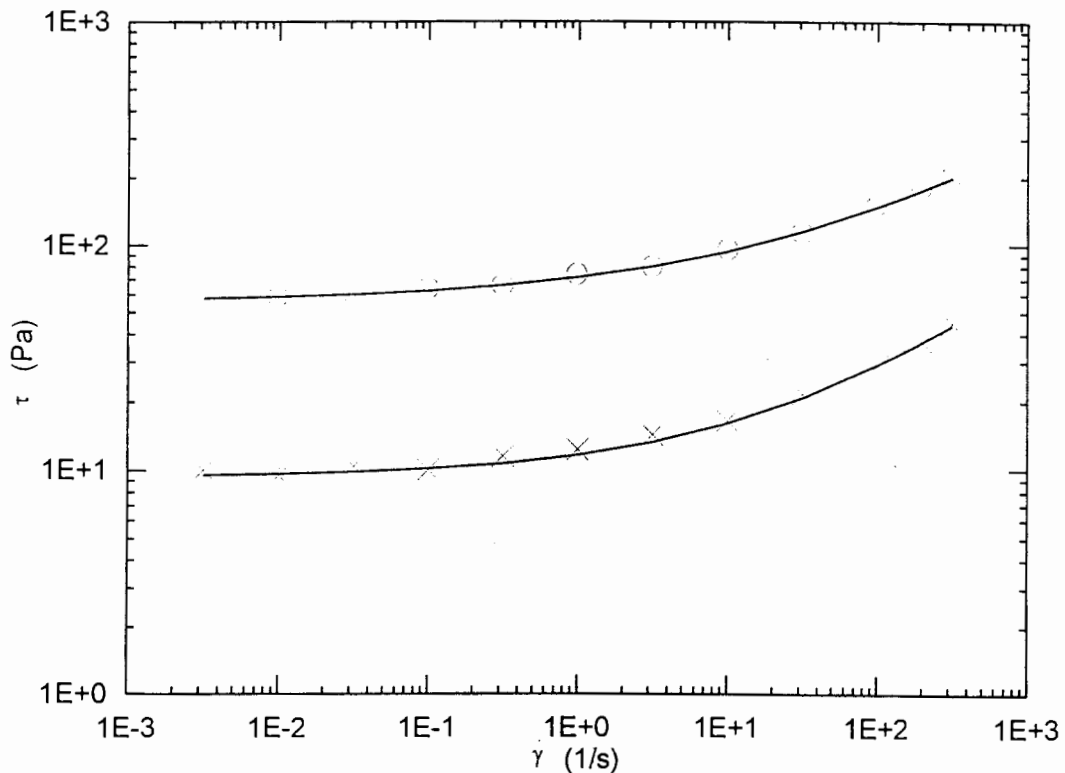


Figure 1 : Courbes d'écoulement obtenues à l'aide du Weissenberg; Gel de Carbopol :  
 o  $C_m=0.41\%$ , x  $C_m=0.11\%$  où  $C_m$  est la concentration massique en Carbopol.

L'étude expérimentale est réalisée sur une plate-forme (Fig. 2) constituée essentiellement d'un canal prismatique dont la longueur, la largeur et la hauteur sont respectivement 5000, 300 et 100 mm. Les positions du front d'onde sont mesurées à l'aide d'un système vidéo rapide à

1000 images/s et d'un caméscope. Pour mesurer les profondeurs de l'écoulement, on a utilisé à la fois un système ultrasonique de 0.1 mm de précision et une jauge de profondeur à affichage digital de 0.01 mm de précision. La position du capteur de déplacement ultrasonique est localisée par un potentiomètre. Afin d'obtenir la combinaison entre la profondeur et la position du capteur, les deux systèmes sont reliés à un ordinateur. L'intérêt de ces méthodes est de permettre des mesures sans contact avec le liquide, et une bonne précision.

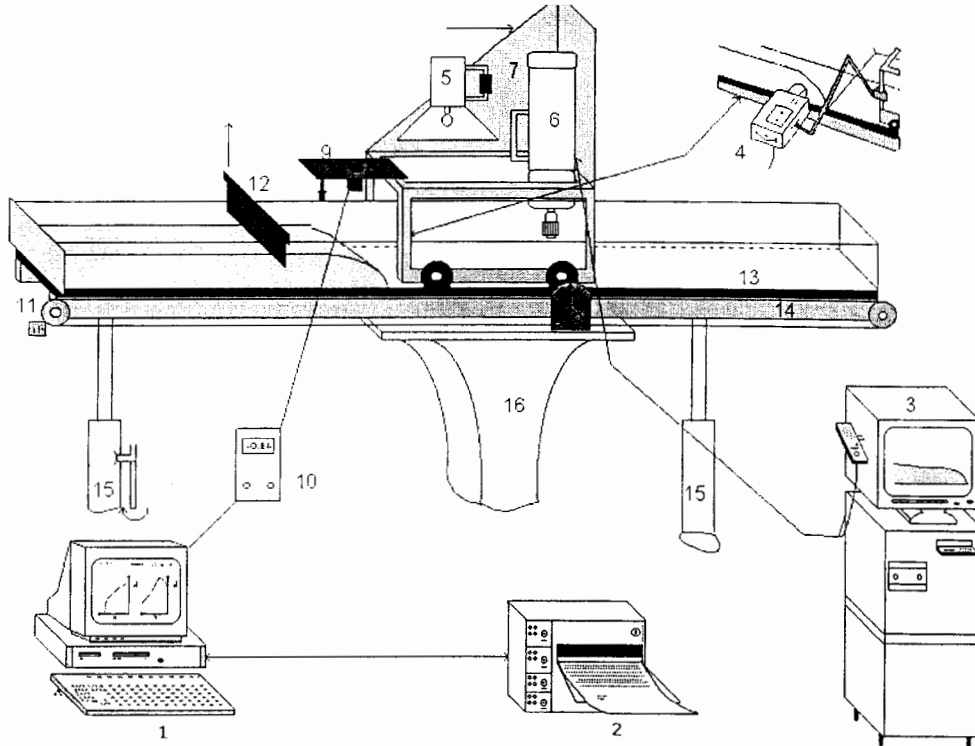


Figure 2 : Dispositif expérimental

- |                                   |                               |                       |
|-----------------------------------|-------------------------------|-----------------------|
| (1) Station d'acquisition         | (7) Chariot porte instruments | (12) Barrage (plaque) |
| (2) Imprimante                    | (8) Système de mesure d'angle | (13) Canal            |
| (3) Moniteur                      | (9) Le capteur de déplacement | (14) Bâti porte canal |
| (4) Caméscope (25 images/s)       | (10) Afficheur digital        | (15) Trépieds         |
| (5) Système d'éclairage (1000W)   | (11) Potentiomètre rotatif    | (16) Support          |
| (6) Caméra rapide (1000 images/s) |                               |                       |

La procédure expérimentale utilisée est la suivante : Le fluide est placé en repos entre deux plaques verticales, une fixe et l'autre mobile (barrage). A l'amont du barrage le fond est sec. A  $t = 0$ , la plaque mobile est enlevée manuellement. On représente ici quelques résultats obtenus dans le cas horizontal et qui portent sur l'évolution du front d'onde en fonction du temps ainsi que l'abscisse du front et le profil de l'écoulement lors de l'arrêt.

Le calcul théorique présenté dans ce travail est basé sur le modèle de Piau. On s'intéresse en particulier à l'évolution en fonction du temps du front d'onde et à l'état d'équilibre.

## 2 Théorie

L'équation de base à considérer est celle de Piau (1996), qui exprime l'équilibre entre les forces de pesanteur, de frottement, d'inertie et des contraintes élongationnelles. Ces dernières peuvent être représentées par un paramètre de forme  $\phi$  supposé constant pour une situation

d'écoulement donnée. Dans le cas d'un radier horizontal, le modèle s'écrit :

$$U_t + \beta U U_{,x} + \left( g + \frac{s\varphi}{\rho h} \operatorname{sgn}(h_{,x}) \right) h_{,x} = -gJ + O(\varepsilon^2) \quad (2)$$

$U$  est la vitesse moyenne,  $h$  est la profondeur du fluide,  $x$  représente l'abscisse sur axe du canal qui est compté positivement suivant la direction de l'écoulement.  $t$  étant le temps,  $g$  est l'accélération de pesanteur,  $\rho$  étant la masse volumique et  $\operatorname{sgn}(h_{,x})$  représenté le signe de la pente de la surface libre (positif, négatif ou nul), compté positif si la profondeur du fluide croît suivant la direction de l'écoulement.  $J = \tau_w / \rho gh$  est la pente de frottement où  $\tau_w$  est la contrainte tangentielle à la paroi.  $\beta \approx 1$  est un coefficient de forme qui tient compte de la répartition non uniforme de la vitesse le long d'une section transversale.  $\varepsilon$  est le rapport de la profondeur de l'écoulement sur sa longueur. Dans le cas de l'écoulement graduellement varié, la valeur du paramètre de forme  $\varphi$  est d'environ 1.5. On vérifie bien qu'on retrouve le modèle classique de Saint-Venant (1871) lorsque le seuil de contrainte est nul.

D'autre part, l'équation de conservation de la masse s'exprime pour un canal rectangulaire prismatique, comme suit :

$$h_t + U h_{,x} + h U_{,x} = 0$$

Pour évaluer la pente de frottement  $J$ , on reproduit l'approximation locale du frottement de l'hydraulique classique, chaque tranche du fluide est représentée par son équivalence en écoulement uniforme et permanent. On obtient pour un canal large :

$$U h = \begin{cases} \frac{h^{m+2}}{(m+2)(m+1)} \left( \frac{\rho g}{k} \right)^m |J|^{m-1} \left( 1 - \frac{s}{\rho gh |J|} \right)^{m+1} \left( m+1 + \frac{s}{\rho gh |J|} \right) J & \text{si } |J| > \frac{s}{\rho gh} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3)$$

Les équations (1), (2) et (3) constituent le modèle d'écoulement d'un fluide de type Herschel-Bulkley dans l'approximation de l'eau peu profonde et pour un canal horizontal infiniment large.

### 2.1 Résolution du problème dans le régime principalement inertiel

On étudie la condition initiale représentée par la figure 3. Le fluide est donc initialement en repos derrière un mur vertical et le fond aval est sec. On introduit le nombre de Reynolds suivant :

$$Re = \frac{\rho H^n (\sqrt{gH})^{2-n}}{k} \quad (4)$$

où  $H$  est la profondeur initiale du réservoir, et les variables réduites :

$$(h^*, U^*, x^*, t^*) = \left( \frac{h}{H}, \frac{U}{\sqrt{gH}}, \frac{x}{H}, \frac{t}{\sqrt{H/g}} \right) \quad (5)$$

Cette situation d'écoulement correspond à  $t^* \ll Re$ , donc aux temps petits. Pour donner ici une solution approchée, on suppose que le réservoir est infiniment long et que le seuil de contrainte est d'une influence négligeable. En outre, on considère l'existence de deux régions: la région supérieure, assez loin de la position du front, et la région frontale. En supposant que le frottement est petit devant l'inertie dans la région supérieure, et prépondérant dans la région frontale, on aboutit à des solutions sous forme de développement en série dont l'abscisse du front d'onde obéit à l'équation suivante :

$$\frac{x_f^*}{t^*} \approx 2 - \left( \frac{2+3m}{2+4m} \right) \chi_1(m) \left[ (2+m)^{1/m} (1/Re) t^* \right]^{\frac{m}{2+3m}} + \left( \frac{2+3m}{2+5m} \right) \chi_2(m) \left[ (2+m)^{1/m} (1/Re) t^* \right]^{\frac{2m}{2+3m}} \quad (6)$$

avec

$$\chi_1(m) \approx \left( \frac{2+3m}{1+m} \right) \left[ \frac{(m+1)(3m+1)2^{1/m}}{(4+7m)m} \right]^{\frac{m}{2+3m}} ; \quad \chi_2(m) \approx \frac{0.977}{m^{0.314}} \quad (7)$$

Notons que la solution inertielle de Ritter (1892) correspond à  $(t^*/Re) \rightarrow 0$ .

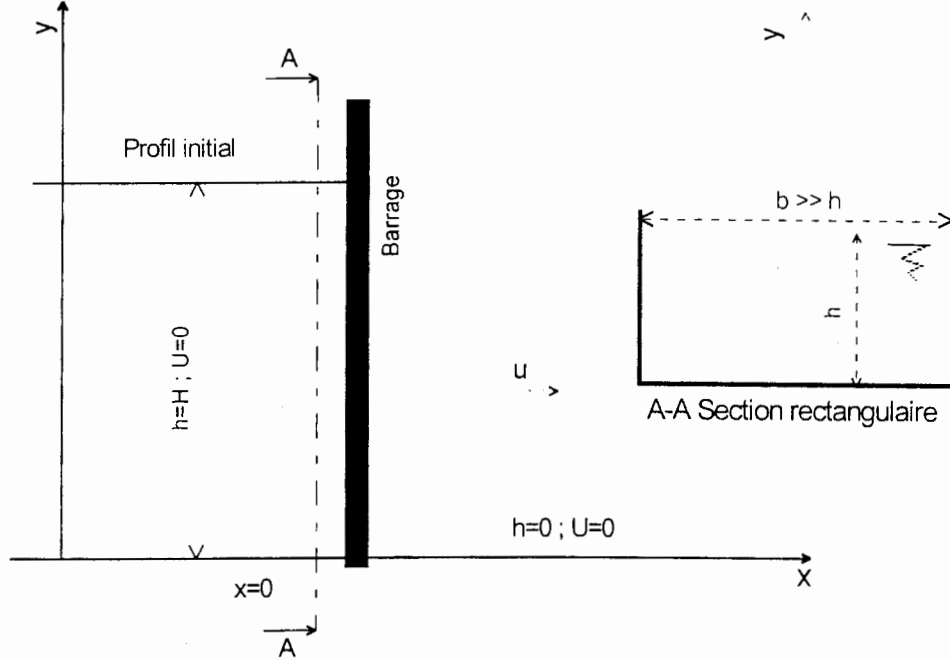


Figure 3 : Position du problème ; La condition initiale étudiée

## 2.2 Résolution du problème dans le régime visqueux

Pour  $Re \ll t^* \ll t_s^*$ , où  $t_s^*$  est le temps lors de l'arrêt de l'écoulement, il convient de négliger d'une part l'inertie, d'autre part le seuil de contrainte. Il résulte après manipulation des équations du mouvement que l'écoulement est gouverné par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{m+2} \left( \frac{\rho g}{2k} \left( \frac{m}{m+1} \right) \right)^m \frac{\partial}{\partial x} \left[ \left( - \frac{\partial}{\partial x} \left( h^{\frac{2(m+1)}{m}} \right) \right)^m \right] = 0 \quad (8)$$

### Réservoir infiniment long

Considérons d'abord l'exemple d'un fluide placé dans un réservoir de très grande dimension, de telle sorte que loin du barrage le fluide puisse être considéré au repos à la profondeur  $H$ . Donc, on suppose ici que la longueur initiale du réservoir ' $L$ ' n'a pas d'influence. Pour simplifier l'équation (8), on définit les variables réduites suivantes :

$$\left( \tilde{h}, \tilde{x}, \tilde{t} \right) = \left( \frac{h}{H}, \frac{x}{H}, \frac{t}{T} \right) \quad \text{où} \quad T = (m+2) \left( \frac{2(m+1)}{m} \right)^m \left( \frac{k}{\rho g H} \right)^m \quad (9)$$

En cherchant des solutions semblables de l'équation (8), on aboutit à la loi d'évolution du front d'onde suivante :

$$\tilde{x}_f(\tilde{t}) = \tilde{c}_f(m) (\tilde{t} - \tilde{c}_i(m))^{\frac{1}{m+1}} \quad (10)$$

où  $\tilde{c}_i(m)$  et  $\tilde{c}_f(m)$  sont des constantes. La première est nulle si nous faisons abstraction de l'histoire inertielle de l'écoulement ( $Re$  petit). Tandis que la deuxième peut être obtenue

numériquement et nous proposons la loi ajustée suivante :

$$\tilde{c}_f(m) \approx \frac{1}{3} + \frac{0.944}{(m+0.548)^{0.85}} \quad \text{erreur} < 0.4\% \quad (11)$$

### Réservoir limité

Prenons maintenant l'exemple d'un réservoir limité. Lorsque la profondeur du fluide à l'extrémité amont du réservoir varie d'une manière remarquable, l'influence de la longueur initiale du réservoir ( $L$ ) doit intervenir. En introduisant dans ce cas les variables adimensionnelles suivante :

$$\left(\hat{h}, \hat{x}, \hat{t}\right) = \left(\frac{h}{H}, \frac{x}{L}, \frac{t}{T}\right) \quad \text{où} \quad T = (m+2) \left(\frac{2(m+1)}{m}\right)^m \left(\frac{k}{\rho g H}\right)^m \left(\frac{L}{H}\right)^{m+1} \quad (12)$$

et en cherchant des solutions semblables de l'équation (8), on aboutit à la loi d'évolution du front d'onde suivante :

$$\hat{x}_f(\hat{t}) = \hat{c}_f(m) \left[\hat{t} + \hat{c}_2(m)\right]^{\frac{1}{3m-2}} - 1 \quad \text{avec} \quad \hat{c}_f(m) = \left(\frac{(3m+2)}{\alpha(m)^{2m+1}} \left(\frac{2(m+1)^2}{m(2m+1)}\right)^m\right)^{\frac{1}{3m+2}} \quad (13)$$

et

$$\alpha(m) = \int_0^1 \left(1 - \eta^{\frac{1+m}{m}}\right)^{\frac{m}{2m+1}} d\eta \approx \frac{2}{3} + \frac{0.297}{m+0.705} \quad \text{erreur} < 0.13\% \quad (14)$$

$\hat{c}_2(m)$  est une constante d'intégration.

Compte tenu des relations (13), il est possible d'évaluer les valeurs de la consistance et de l'indice de rhéofluidification d'un fluide en loi de puissance. En effet, pour ce type de fluide on doit avoir aux temps grands :

$$x_f(t) = K t^\alpha \quad (15)$$

Les mesures dans le canal donnent les valeurs expérimentales de  $x_f(t)$  qui peuvent être ajustées avec la loi (15). On en déduit les valeurs de  $K$  et  $\alpha$ . On calcul ensuite les valeurs de  $m$  et  $k$  à partir des relations suivantes :

$$m = \frac{1-2\alpha}{\alpha} \quad \text{et} \quad k = \left(\frac{m}{2m+2}\right) \left(\frac{1}{m+2}\right)^{1/m} \left(\frac{\hat{c}_f(m)}{K}\right)^{\frac{3m+2}{m}} V_0^{\frac{2m+1}{m}} \rho g \quad (16)$$

où  $V_0 = H.L$  est le volume initial du fluide

### 2.3 Etat d'équilibre

Pour caractériser l'état d'équilibre, on supposera que l'arrêt se produit lorsque la contrainte pariétale se réduit au seuil d'écoulement, soit d'après l'équation (3),  $J = s/\rho g h$ . En négligeant l'inertie dans l'équation (1), il résulte que :

$$-h_{,x} + \frac{s\varphi}{\rho g h} h_{,x} = \frac{s}{\rho g h} \quad (17)$$

En remplaçant les variables physiques par les variables  $\hat{\quad}$  (définies dans les relations (12)), on fait apparaître l'influence de deux nombres adimensionnels : le nombre d'Oldroyd 'Od' (il traduit l'influence du seuil de contrainte) et le nombre  $\phi$  (traduit l'influence des contraintes élongationnelles), soit respectivement :

$$Od = \frac{s}{\rho g H} \frac{L}{H} ; \quad \phi = \frac{\varphi s}{\rho g H} \quad (18)$$

En désignant par  $\hat{h}_{stop}$  le profil de l'écoulement à l'équilibre et  $\hat{x}_{fstop}$  l'abscisse du front d'onde lors de l'arrêt, l'équation (17) peut être intégrée avec la condition au front  $\hat{h}_{stop}(\hat{x} = \hat{x}_{fstop}) = \hat{h}_f = \phi_0 = \lambda \phi$ . La valeur de  $\phi_0$ , donc  $\lambda$ , peut être évaluée en mesurant la profondeur limite de H au-dessous de laquelle le fluide dans le réservoir ne bouge pas, ou la profondeur du fluide à l'abscisse du front d'onde, soit :

$$\lambda = \frac{\rho g h_f}{\varphi s} \quad (19)$$

Avec le fluide synthétique utilisé, on obtient expérimentalement  $\lambda \approx 1$ , et en se limitant à ce cas, le profil de la surface lors de l'arrêt est :

$$\hat{h}_{stop} = \phi + \sqrt{2Od(\hat{x}_{fstop} - \hat{x})} \quad (20)$$

Si de plus, nous limitons par la suite notre analyse au cas où le nombre d'Oldroyd est assez petit pour qu'on puisse considérer que tout le fluide du réservoir est déplacé par l'écoulement qui précède l'arrêt, on montre que la profondeur du fluide à l'extrémité amont du réservoir ( $h_{0stop}$ ) obéit à l'équation suivante :

$$h_{0stop} \approx \frac{\varphi s}{2\rho g} + \left( \frac{3s V_0}{\rho g} \right)^{1/3} \quad (21)$$

L'abscisse du front lors de l'arrêt est :

$$x_{fstop} \approx \frac{\rho g}{2s} \left[ \left( \left( \frac{3s V_0}{\rho g} \right)^{1/3} - \frac{\varphi s}{2\rho g} \right)^2 \right] - L \quad (22)$$

On vérifie que le profil de la surface libre lors de l'arrêt (équation 20) est ainsi défini. D'autre part, il est possible, si on dispose des valeurs expérimentales de  $h_{0stop}$  et  $x_{fstop}$ , d'évaluer la valeur du seuil de contrainte en utilisant la relation suivante :

$$s = \frac{(\varphi h_{0stop} + x_{fstop} + L)\rho g}{\varphi^2} \left[ 1 - \sqrt{1 - \left( \frac{\varphi h_{0stop}}{\varphi h_{0stop} + x_{fstop} + L} \right)^2} \right] \quad (23)$$

Signalons enfin que les relations simples présentées ici sont valables sous les hypothèses indiquées mais que d'autres situations d'arrêt, qui ne figurent pas dans ce manuscrit, ont pu être caractérisées et leur domaine d'application a été établi.

Compte tenu d'un grand allongement du fluide au repos on peut encore simplifier la relation (23) par la formule approchée (24) :

$$s \approx \frac{\rho g h_{0stop}}{2} \left( \frac{h_{0stop}}{\varphi h_{0stop} + x_{fstop} + L} \right) \quad (24)$$

## Remarque

Chaque des solutions analytiques est valable lorsque le temps est retreint à une plage de variation adéquate. On passe par le régime principalement inertiel, puis le premier régime visqueux, le deuxième régime visqueux, et enfin l'arrêt total de l'écoulement. Pour évaluer les différentes transitions, on a assuré la continuité de la fonction  $\hat{x}_f(\hat{t})$  le long de l'écoulement.

### 3 Résultats obtenus et comparaisons

La figure 4 représente en variables adimensionnelles (indiquées par le signe  $\wedge$ , relations 12), l'évolution en fonction du temps de la position du front d'onde. Les mesures ont été comparées à notre solution approchée (comportant le premier régime où l'écoulement est principalement inertiel, la phase visqueuse et l'arrêt de l'écoulement). L'accord obtenu est satisfaisant.

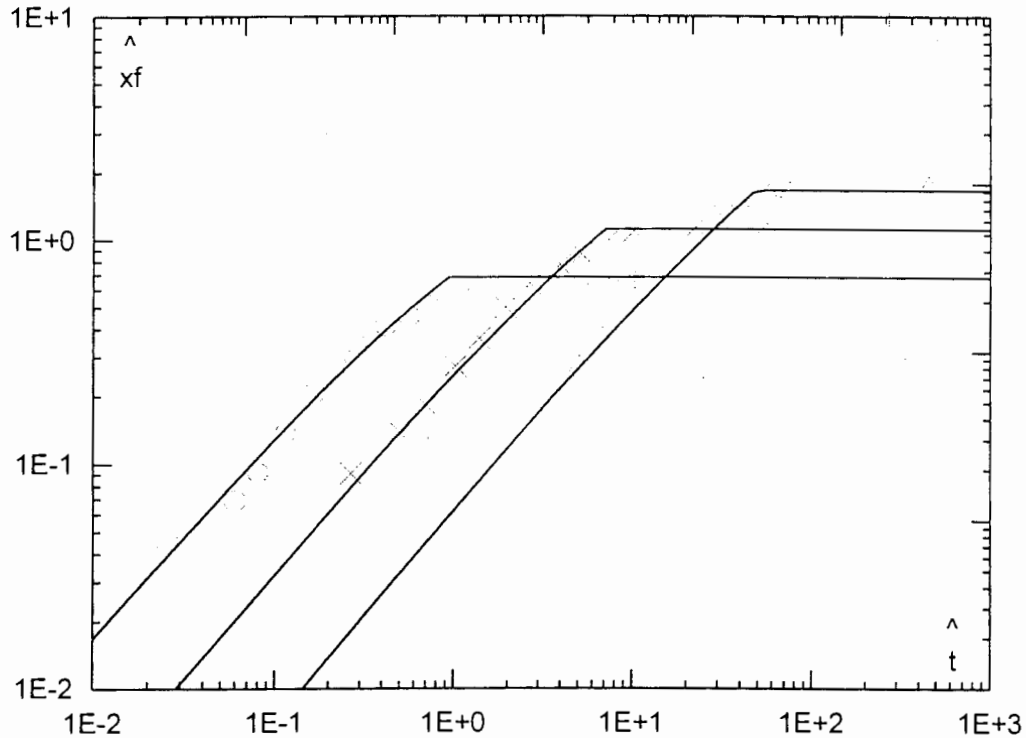


Figure 4 : Evolution de la position du front d'onde en fonction du temps, variables adimensionnelles ;  $C_m = 0.11\%$ ,  $s = 11 \text{ Pa}$ ,  $k = 2.6 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$ ,  $n = 0.45$ ,  $H = 55 \text{ mm}$ ,  $\phi = 0.031$ ,  $\Delta L = 110 \text{ mm}$  ( $Od = 0.041$ ,  $Re = 32.3$ ),

$L = 220 \text{ mm}$  ( $Od = 0.082$ ,  $Re = 16.2$ ),  $OL = 440 \text{ mm}$  ( $Od = 0.163$ ,  $Re = 8.1$ ), ——— Théorie

Un résultat également intéressant de cette étude, concerne l'arrêt d'écoulement. Cette propriété des fluides à seuil de contrainte se manifeste lorsque la plasticité du fluide domine les autres termes résistants (frottements visqueux et l'inertie). Si l'arrêt est au seuil d'équilibre statique, on a montré théoriquement l'influence à la fois du nombre d'Oldroyd et  $\phi$ . Sur la figure 5, on représente la variation de l'abscisse du front lors de l'arrêt en fonction du nombre d'Oldroyd. On obtient un accord remarquable avec la théorie lorsqu'on tient compte des contraintes élongationnelles, i. e de  $\phi$ .

Sur la figure 6 on représente le profil de la surface libre lors de l'arrêt en fonction du nombre d'Oldroyd. On choisit des valeurs du nombre d'Oldroyd assez faibles. On vérifie dans ce cas que le fluide s'écoule dans l'ensemble du réservoir et que la hauteur à l'extrémité amont du réservoir diminue avec le nombre d'Oldroyd. L'ensemble de ces profils a été comparé à la prédiction de la théorie. L'accord est satisfaisant.



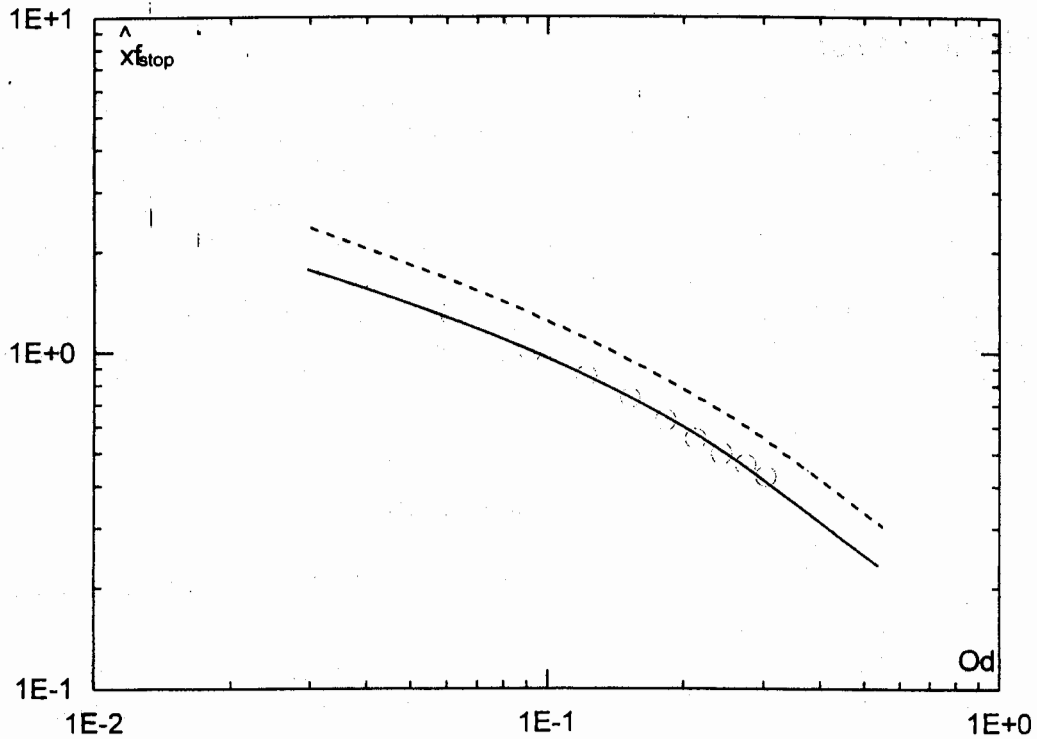


Figure 5 : Position du front d'onde lors de l'arrêt en fonction de  $Od$ , variables adimensionnelles,  $C_m = 0.41\%$  ( $s=60$  Pa,  $k=15.6$  Pa.s<sup>n</sup>,  $n=0.39$ ),  $\circ$  Expérience  $H=100$  mm, — Théorie ( $\phi = 0.092$ ), — Théorie ( $\phi = 0$ )

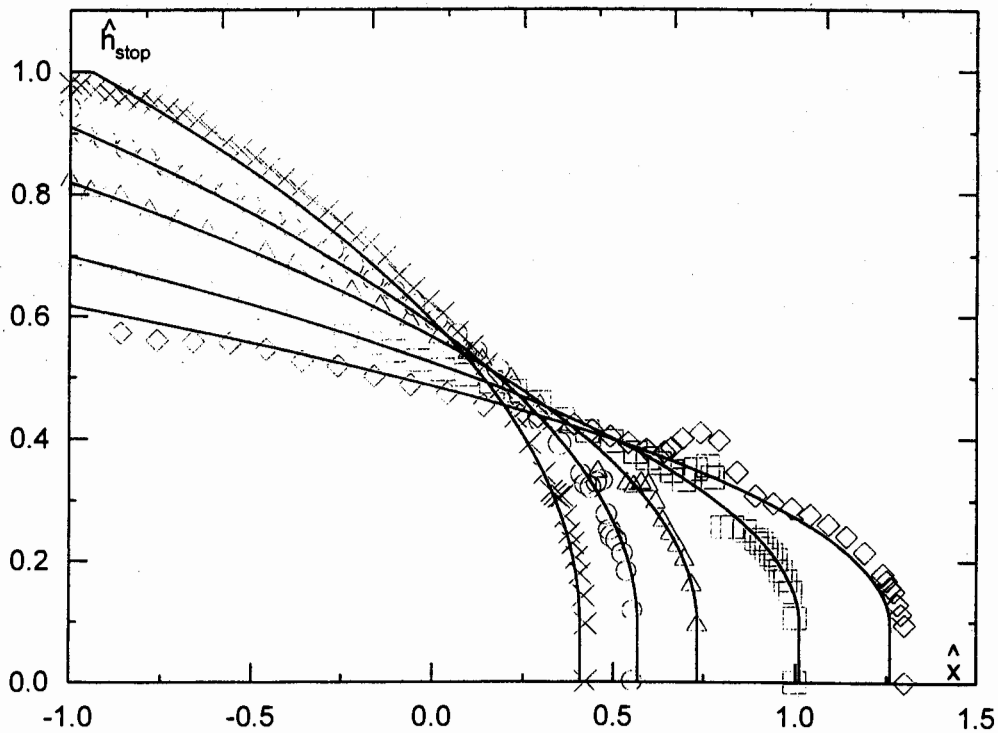


Figure 6 : Profil d'équilibre en fonction de  $Od$ ;  $C_m = 0.41\%$  ( $s=60$  Pa,  $k=15.6$  Pa.s<sup>n</sup>,  $n=0.39$ ),  $H=100$  mm,  $\diamond$   $L=100$  mm ( $Od=0.061$ ),  $\square$   $L=150$  mm ( $Od=0.092$ ),  $\Delta$   $L=250$  mm ( $Od=0.153$ ),  $\circ$   $L=350$  mm ( $Od=0.214$ ),  $\times$   $L=500$  mm ( $Od=0.306$ ), — Théorie ( $\phi = 0.092$ )

## 4 Conclusion

On a proposé dans ce travail sur la rupture de barrage viscoplastique un ensemble de lois théoriques comportant la phase initiale de l'écoulement où le régime est principalement inertiel, elle même suivie de la phase visqueuse et de l'arrêt de l'écoulement. D'autre part, on a réalisé une étude expérimentale dans un canal prismatique horizontal de section rectangulaire. Les résultats obtenus sont comparables aux prédictions théoriques. Le profil d'équilibre a permis d'identifier, d'une part l'influence du nombre d'Oldroyd, d'autre part l'influence des contraintes élongationnelles. Cet écoulement peut donc constituer un nouveau rhéomètre très économique facilement utilisable pour avoir des valeurs sur la consistance des matériaux à seuil d'écoulement.

## Bibliographie

- Ayadi A., (1996) Ecoulement à surface libre des boues argileuses, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble I
- Coussot, P (1992) Rhéologie des boues et laves torrentielles étude de dispersions et suspensions concentrées, Ph.D. thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble
- Debiane, K. (2000) Hydraulique des écoulements laminaires à surface libre dans un canal pour des milieux visqueux ou viscoplastiques. Régimes uniforme, graduellement varié, et rupture de barrage. Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble I.
- De Saint-Venant, B. (1871) Théorie du mouvement non permanent des eaux. Comptes Rendus de l'Académie des Sciences, 73, 237.
- Magnin A., et Piau J.M., (1987) Shear rheometry of fluids of yield stress, Non-Newtonian Fluid Mechanics, 23, 91-106
- Magnin A., et Piau J.M., (1990) Cone and plate rheology of yield stress, Study of an aqueous gel" Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 36, 85-108
- Piau, J.M. (1996) Flow of a yield stress fluid in a long domain. Application to flow on an inclined plane, Journal of Rheology, 40(4):711.
- Ritter, A. (1892) Die Fortpflanzung der Wesser Wellen, Z. des Ver. Deutsch Ing; 36(33):947

# TRAÎNÉE ET STABILITÉ D'OBJETS EN FLUIDE A SEUIL

Laurent JOSSIC et Albert MAGNIN

Laboratoire de Rhéologie

CNRS (UMR 5520), INP Grenoble, Université Joseph Fourier

Domaine Universitaire, B.P. 53, 38041 Grenoble CEDEX 9.

## RESUME

La force de traînée s'exerçant sur des objets se déplaçant à très faibles vitesses imposées, dans un fluide à seuil, a été mesurée. Dans ces conditions, les effets du seuil d'écoulement sont prépondérants. Un soin particulier a donc été porté à la détermination précise du seuil d'écoulement, ainsi qu'au contrôle des phénomènes d'interface (glissement), lors de la caractérisation rhéométrique des fluides. Sur cette base, les coefficients de traînée d'objets de formes courantes ont été déterminés. D'autre part, le rôle important des conditions d'interface fluide-objet a été mis en évidence. A partir de ces résultats, un critère de stabilité de l'objet dans le fluide est proposé. Il permet d'estimer le seuil d'écoulement nécessaire pour équilibrer les forces de gravité.

## ABSTRACT

The drag force exerted on objects moving at very low velocities in a yield stress fluid was measured. In these quasi static conditions, yield stress effects are predominant. Particular care was paid to determining the yield stress and checking interface conditions when characterising these fluids from the rheometric standpoint. Drag coefficients could then be determined for interesting objects of various shapes. The important role of fluid-object interface effects was also highlighted. On the basis of these results, a stability criterion is proposed for the object in the fluid, so that the yield stress needed to balance buoyancy forces can be estimated.

**MOTS CLES :** stabilité, seuil d'écoulement, force de traînée, rhéologie.

## INTRODUCTION

Le premier objectif de cette étude est de donner une estimation expérimentale de la force de traînée s'exerçant sur un objet isolé, se déplaçant à très faible vitesse imposée, dans des conditions quasi-statiques et cela dans un fluide viscoplastique. Les données de la littérature sur ce sujet sont en effet limitées (Chhabra, 1993). Contrairement à des expériences de sédimentation, la vitesse imposée permet de lever l'indétermination de la répartition des contraintes sur la surface de l'objet. Sur la base de ces résultats, une évaluation du critère de stabilité est proposée à partir des coefficients de traînée obtenus lorsque la vitesse tend vers zéro. Ces résultats ont été obtenus en portant une attention toute particulière à des aspects importants, que les études antérieures n'ont en général pas pris en compte. Tout d'abord, un dispositif expérimental a été instrumenté. Il permet de déplacer un objet à de très faibles

vitesse imposées, correspondant à des taux de cisaillement allant de  $10^{-5}$  à  $10^{-1} \text{ s}^{-1}$ , soit des niveaux de contraintes de l'ordre du seuil d'écoulement. On se place ainsi dans le domaine quasi-statique, très peu exploré expérimentalement. Dans ce domaine, les phénomènes sont gouvernés par le seuil d'écoulement. Des fluides viscoplastiques non thixotropes ont été finement caractérisés dans le domaine des faibles taux de cisaillement, de l'ordre de ceux qui sont mis en jeu lors de l'expérience. Le glissement, qui peut avoir lieu à la surface des outils de rhéométrie, a été contrôlé. La mesure précise et contrôlée du seuil d'écoulement permet de lever une des principales incertitudes de la détermination du critère de stabilité, liée à la valeur exacte du seuil d'écoulement, (Chhabra, 1993). Les échelles de longueur de la rugosité des objets ont également été contrôlées. Il apparaît que les conditions à l'interface fluide-objet jouent un grand rôle quant à la valeur du critère de stabilité. Cet aspect n'a encore jamais été abordé dans la littérature. L'influence de l'orientation, quant aux coefficients de traînée et à la stabilité des objets, a également été analysée.

## APPROCHE THEORIQUE

### COEFFICIENT DE TRAÎNÉE

Un objet se déplaçant dans un fluide viscoplastique, à très faible vitesse, engendre dans son voisinage des contraintes de l'ordre du seuil d'écoulement  $\tau_0$ . La force de traînée  $F_t$  qu'il subit, peut donc être adimensionnalisée par le produit  $A \cdot \tau_0$ , où  $A$  représente la surface faisant front à l'écoulement. Il vient ainsi le coefficient de traînée

$$C_d^* = \frac{F_t}{A \cdot \tau_0} \quad \text{Eq. (1)}$$

Cette expression n'a de sens que dans le domaine des très faibles vitesses, où les effets d'inertie sont négligeables par rapport aux effets de seuil.

Le comportement des fluides viscoplastiques utilisés peut être modélisé en monodimensionnel par une équation d'Herschel-Bulkley :

$$\tau = \tau_0 + K\dot{\gamma}^n \quad \text{Eq. (2)}$$

Cette équation impose respectivement pour les nombres de Reynolds et de Bingham, les expressions ci-dessous. L'échelle de longueur  $l$  représente une dimension caractéristique de l'écoulement.

$$\text{Re}^* = \frac{\rho l^n U^{2-n}}{K} \quad \text{Bi}^* = \frac{\tau_0}{K(U/l)^n} \quad \text{Eq. (3) et (4)}$$

Dans le cas des très faibles vitesses, qui concerne cette étude,  $\text{Re}^*$  est très petit et  $\text{Bi}^*$  est grand.

### CRITÈRE DE STABILITÉ

Le rapport des effets du seuil d'écoulement aux effets de gravité est représenté par :

$$Y = \frac{\tau_0}{gl\Delta\rho} \quad \text{Eq. (5)}$$

où  $l$  est la dimension caractéristique de l'objet considéré. La plus petite valeur de ce nombre pour laquelle l'objet est immobile est appelée critère de stabilité :  $Y_{\text{max}}$ . En égalant force de

gravité et force de traînée due au seuil d'écoulement, il vient  $l=V/A$ , où  $V$  est le volume de l'objet. Cependant, pour calculer le critère de stabilité, les objets de différentes géométries ont été assimilés à des sphères ayant le même volume. Cette définition, qui consiste à prendre la sphère comme référence, permet de juger la qualité de l'évaluation du critère de stabilité d'un objet quelconque, à partir de la valeur obtenue, dans le cas de la sphère. Elle a de plus l'avantage de permettre une comparaison entre les différentes géométries à volume constant. La poussée d'Archimède à laquelle les objets sont soumis peut alors s'écrire :

$$F_t = \frac{\pi}{6} g \Delta \rho d_e^3 . \quad \text{Eq. (6)}$$

avec  $d_e=(6V/\pi)^{1/3}$  diamètre de la sphère de même volume. Aux très faibles vitesses, cette force est équilibrée par une force de traînée due au seuil d'écoulement, et a priori indépendante de la vitesse. Celle-ci peut alors être mise sous la forme :

$$F_t = C \tau_0 \frac{\pi d_e^2}{4} . \quad \text{Eq. (7)}$$

$C$  est un coefficient sans dimension. Il vient ainsi une évaluation expérimentale du critère de stabilité de l'objet :

$$Y_{\max} = \frac{\tau_0}{g d_e \Delta \rho} = \frac{2}{3C} . \quad \text{Eq. (8)}$$

## DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET MATERIAU

Le dispositif expérimental, conçu pour réaliser ces essais, permet de déplacer un réservoir contenant le gel à une vitesse constante comprise entre  $10^{-2}$  et  $10^{-6}$  m.s<sup>-1</sup>. L'objet considéré est fixe, suspendu à une balance de précision.

Différents gels de Carbopol 940, fabriqué par Goodrich, ont été utilisés. Les seuils d'écoulement ont été finement caractérisés par rhéométrie rotative à vitesse imposée. Les paramètres du modèle de Herschel-Bulkley sont répertoriés, pour chaque gel, dans le tableau ci-dessous. Dans le cas du gel 1, des mesures ont été effectuées avec des outillages "lisses" (rugosité inférieure à 1µm) et "rugueux" (rugosité de l'ordre de 200 µm). Dans le cas des surfaces "lisses", un glissement à l'interface fluide-outil a pu être visualisé (Magnin et Piau 1987, 1990). Les valeurs de la contrainte apparente sont plus faibles lorsqu'il y a glissement. L'erreur engendrée sur la valeur du seuil d'écoulement est de l'ordre d'un facteur 2. Ces mesures illustrent les effets du glissement aux parois selon les conditions aux interfaces.

|                        | $\tau_0$ (Pa) | $K$ (Pa.s <sup>n</sup> ) | $n$ (-) |
|------------------------|---------------|--------------------------|---------|
| Gel 1 (outils rugueux) | 17,3          | 16,6                     | 0,35    |
| Gel 1 (outils lisses)  | 8             | 14,3                     | 0,32    |
| Gel 2                  | 35,8          | 31                       | 0,19    |
| Gel 3                  | 25,9          | 15,5                     | 0,23    |
| Gel 4                  | 51,4          | 26,8                     | 0,22    |

Tableau 1 : Caractéristiques rhéométriques des gels.

# RESULTATS EXPERIMENTAUX

## RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Les coefficients de traînée et les critères de stabilité mesurés sont regroupés dans le tableau 2. Pour le disque et les cylindres, la position verticale est celle pour laquelle l'axe de symétrie est vertical, parallèle à la direction de l'écoulement. Le cube est vertical lorsque la droite reliant deux coins opposés est verticale. La position horizontale correspond au cas où les faces supérieures et inférieures sont perpendiculaires à la direction de l'écoulement. Une seule position a été envisagée pour les cônes, base perpendiculaire à la direction de l'écoulement.

| Géométries           | Position   | Surface  | $C_d^* = F_t / \tau_0 \cdot A$ | $Y_{max}$ |
|----------------------|------------|----------|--------------------------------|-----------|
| Sphère               | -          | Lisse    | 6,7                            | 0,099     |
|                      | -          | Rugueuse | 11,5                           | 0,058     |
| Disque<br>H/D=0,02   | Horizontal | Lisse    | 27,7                           | 0,077     |
|                      |            | Rugueuse | 30,6                           | 0,054     |
| Cylindre<br>H/D=0,14 | Horizontal | Lisse    | 16,7                           | 0,078     |
|                      |            | Rugueuse | 17,9                           | 0,067     |
|                      | Vertical   | Lisse    | 12,3                           | 0,019     |
|                      |            | Rugueuse | 12                             | 0,023     |
| Cylindre<br>H/D=1    | Horizontal | Lisse    | 8,3                            | 0,082     |
|                      |            | Rugueuse | 10,7                           | 0,064     |
|                      | Vertical   | Lisse    | 9,4                            | 0,093     |
|                      |            | Rugueuse | 27,8                           | 0,032     |
| Cylindre<br>H/D=5    | Horizontal | Lisse    | 9,5                            | 0,042     |
|                      |            | Rugueuse | 11                             | 0,038     |
|                      | Vertical   | Lisse    | 17                             | 0,150     |
|                      |            | Rugueuse | 32                             | 0,075     |
| Cube                 | Horizontal | Lisse    | 6,5                            | 0,125     |
|                      |            | Rugueuse | 6,7                            | 0,120     |
|                      | Vertical   | Lisse    | 10,5                           | 0,044     |
|                      |            | Rugueuse | 9,8                            | 0,048     |
| Cône                 | -          | Lisse    | 10,1                           | 0,026     |
|                      | -          | Rugueuse | 9,9                            | 0,027     |

Tableau 2 : Résultats expérimentaux. (Voir le texte pour la définition de l'orientation).

## EFFETS DE LA VITESSE

Pour chaque objet, des mesures ont été effectuées dans une gamme de vitesses comprises entre  $10^{-6}$  et  $10^{-3}$  m/s. Il est apparu que la force en régime permanent est

indépendante de la vitesse, figure 1. Cette conclusion a pu être tirée pour les différentes géométries. Les vitesses mises en jeu correspondent à des taux de cisaillement de l'ordre de  $10^{-5}$  à  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Pour ces taux de cisaillement, le gel se comporte comme un matériau plastique, les effets visqueux sont très faibles. Les contraintes, engendrées par le déplacement, sont donc de l'ordre de la contrainte seuil et indépendantes de la vitesse. Elles correspondent au plateau de la courbe d'écoulement, où la contrainte est indépendante du taux de cisaillement. La force de traînée est alors indépendante de la vitesse de déplacement et gouvernée par le seuil d'écoulement. Ceci justifie l'utilisation de la contrainte seuil pour adimensionnaliser la force de traînée. D'autre part, cela justifie que le critère de stabilité, correspondant à une vitesse de déplacement nulle, puisse être évalué à partir de mesures de force de traînée en conditions quasi-statiques. Enfin, il faut noter que la reproductibilité des mesures est nettement supérieure à celle des expériences de sédimentation. (Atapattu, 1995; Chhabra, 1998).

### INFLUENCE DE LA RUGOSITÉ

L'examen du tableau 2 et des figures 1 à 5 montre que les forces de traînée mesurées sur les objets "lisses" sont du même ordre de grandeur ou inférieures à celles mesurées sur les objets "rugueux". On peut donc avancer que le glissement observé lors de la caractérisation rhéométrique a également lieu dans les écoulements autour d'obstacles. Dans les études précédentes, cet aspect n'a jamais été pris en compte. Les résultats obtenus avec les surfaces "rugueuses" sont a priori les plus proches de ceux obtenus avec des conditions d'adhérence à la paroi correspondant aux études théoriques. Ils seront donc plus particulièrement examinés dans cette étude.

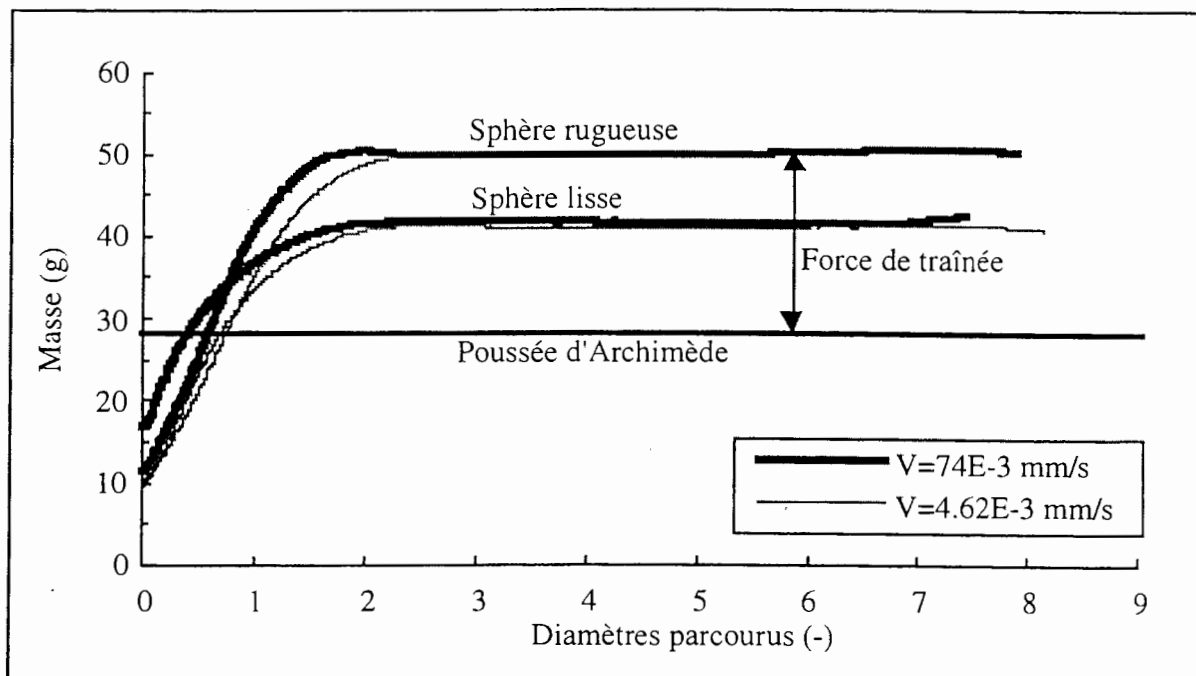


Figure 1 : Evolution du signal à différentes vitesses pour des sphères "lisses" et "rugueuses".

## FORCE DE TRAÎNÉE

### CAS DES CYLINDRES

Le cas des cylindres permet de ne faire varier qu'un paramètre géométrique et d'en observer l'influence. Les figures 2 et 3 montrent l'évolution du coefficient de traînée  $C_d^*$  en fonction de l'élanement, dans les positions horizontales et verticales.

En position horizontale (figure 2),  $C_d^*$  est indépendant de l'élanement à partir de  $H/D=1$ . Au-delà de ce rapport, la force de traînée est proportionnelle au maître-couple. L'élanement minimal pour qu'un cylindre horizontal soit considéré comme infini dans un fluide viscoplastique, apparaît être de quelques unités. Dans le cas du fluide newtonien, cette valeur est au minimum de l'ordre de dix. Cette différence peut s'expliquer par le fait que les contraintes engendrées par le déplacement d'un objet, se propagent moins loin en fluide viscoplastique qu'en fluide newtonien. Lorsque le rapport  $H/D$  tend vers zéro, il semble que  $C_d^*$  varie comme l'inverse de  $H/D$ . Les surfaces latérales jouent un rôle de plus en plus important. La force de traînée tend à devenir proportionnelle à la surface latérale. En position horizontale, les coefficients de traînée obtenus avec des surfaces "lisses" sont légèrement inférieurs à ceux obtenus avec des surfaces "rugueuses". Les écarts dus à la rugosité sont faibles en comparaison à ceux enregistrés dans la position verticale.

En position verticale (figure 3), lorsque  $H/D$  tend vers zéro, le coefficient de traînée tend vers une constante. La force de traînée est alors proportionnelle au maître-couple et indépendante de  $H$ . Quand  $H/D$  croît,  $C_d^*$  varie linéairement avec  $H/D$ . La force de traînée évolue alors comme le produit  $A.H/D$ , c'est-à-dire comme la surface latérale. A diamètre donné, la force de traînée varie donc linéairement avec la longueur du cylindre. De même que dans le cas du cylindre horizontal, il apparaît que le cas du cylindre infini est atteint à partir de quelques unités du rapport  $H/D$ .

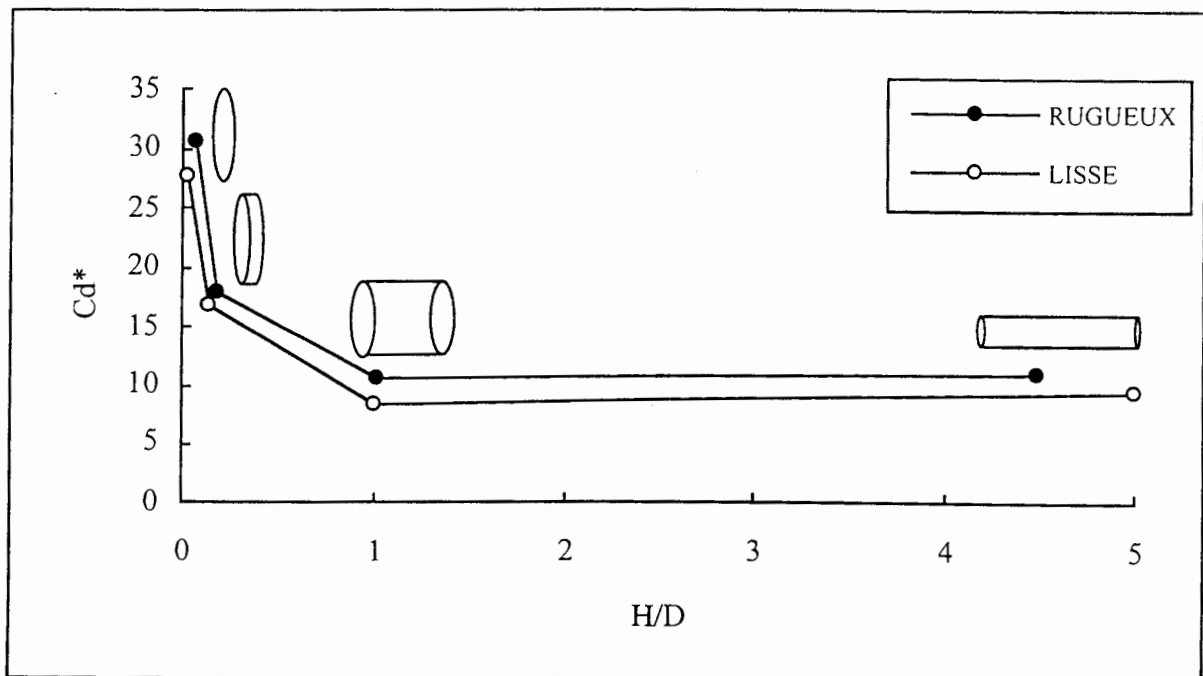


Figure 2 : Evolution du coefficient de traînée  $C_d^*$  d'un cylindre horizontal en fonction de l'élanement.



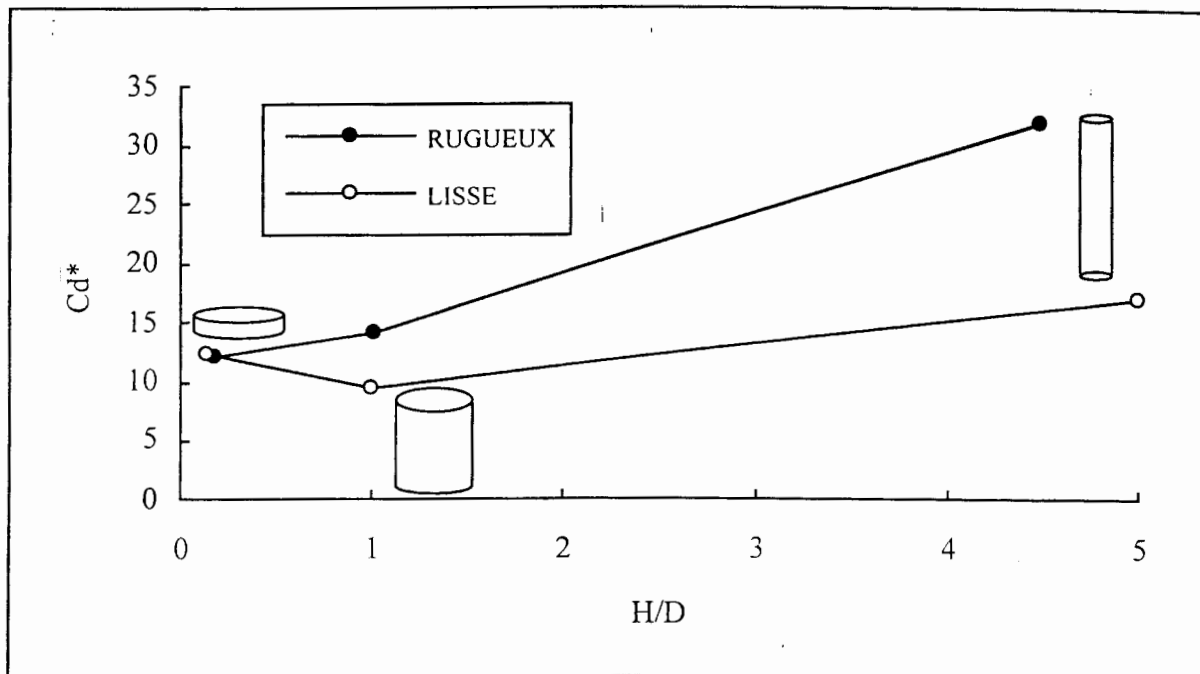


Figure 3 : Evolution du coefficient de traînée  $C_d^*$  d'un cylindre vertical en fonction de l'élancement.

La rugosité ne joue aucun rôle lorsque l'élancement tend vers zéro. Dans ce cas,  $C_d^*$  est déterminé par la géométrie de l'objet, c'est-à-dire son maître-couple, et non pas par l'état de surface. Au delà de  $H/D=1$ , les différences observées entre objets "lisses" et "rugueux" sont d'autant plus importantes que la surface latérale est grande par rapport au maître-couple. Ces écarts peuvent s'expliquer par un glissement du gel sur la surface des objets. Cette hypothèse est d'autant plus justifiée que les taux de cisaillement mis en jeu sont faibles. Le glissement aurait donc essentiellement lieu sur les surfaces latérales. L'influence de la rugosité sur le coefficient de traînée dépend donc de l'orientation.

#### INFLUENCE DE LA FORME DES OBJETS

Pour examiner l'influence de la forme des objets,  $C_d^*$  est représenté en fonction du rapport de la surface latérale au maître-couple, (figure 4). La surface de l'objet, projetée sur un plan vertical, est appelée surface latérale. Cette approche permet d'estimer l'influence du seuil d'écoulement sur les surfaces frontales et latérales.

Pour des rapports de  $S_{lat}/A$  inférieurs à une valeur de l'ordre de 4,  $C_d^*$  est relativement constant et de l'ordre de dix pour les objets "rugueux". Dans le cas des objets "lisses", il vient  $C_d^* \approx 9$ . Pour ces objets, la force de traînée dépend du maître-couple et assez peu de la forme. Au-delà de  $S_{lat}/A \approx 4$ ,  $C_d^*$  augmente sensiblement avec le rapport  $S_{lat}/A$ . Pour ces objets, la force de traînée dépend de la surface latérale.

Pour un objet donné,  $C_d^*$  dépend donc de l'orientation et ce, de manière d'autant plus marquée que l'objet n'est pas sphéroïdal. Ainsi, dans le cas du cylindre d'élancement 5 "rugueux",  $C_d^*$  varie de 65% entre les positions horizontales et verticales. Dans le cas du cylindre d'élancement 1, elle n'est que de 24%.

Les valeurs obtenues pour  $S_{lat}/A$  inférieur à 4 sont inférieures à celles que proposent Brooks et Whitmore (1968) :  $C_d^*=16,7$ . Cet écart provient peut-être des incertitudes sur le seuil d'écoulement. Il faut en effet remarquer que ce résultat a été obtenu avec une suspension d'argile susceptible de présenter un caractère thixotrope. Dans ce cas, le seuil d'écoulement dépend de l'histoire en cisaillement du fluide. Or, les mesures ont été effectuées après que l'objet ait été déplacé à une vitesse de 7 cm/s, puis arrêté brusquement. Cette méthode induit peut-être une indétermination de la répartition initiale des contraintes autour de l'objet. En déplaçant l'objet à très faible vitesse, cette indétermination est levée, le mode de chargement est contrôlé. De plus, la détermination du seuil d'écoulement n'a pas été effectuée dans le domaine des taux de cisaillement correspondant aux expériences. Il a été obtenu par extrapolation depuis des taux de cisaillement élevés.

Le rôle des conditions d'interfaces objet-fluide à seuil, mis en évidence dans le cas des cylindres, se retrouve pour les autres objets avec des intensités différentes. Les écarts de force de traînée entre objets "lisses" et "rugueux" sont d'autant plus importants que les surfaces latérales sont grandes par rapport au maître-couple. Le glissement à la paroi semble avoir lieu de façon privilégiée sur les surfaces latérales.

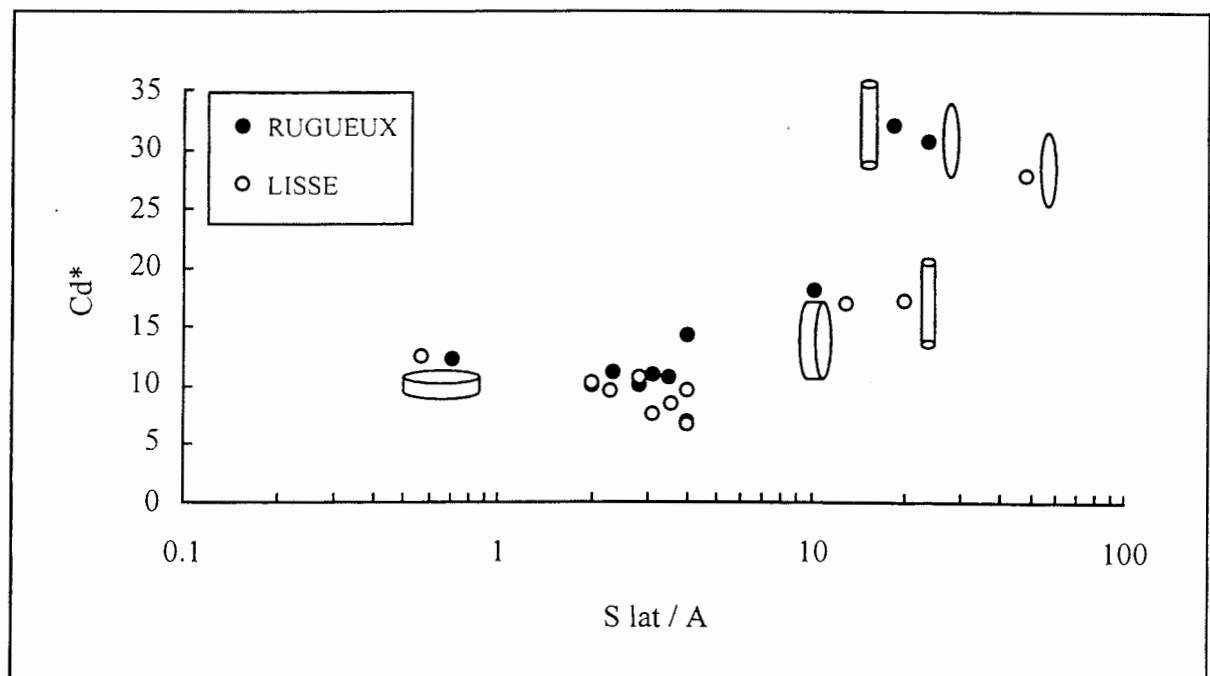


Figure 4 : Evolution du coefficient de traînée  $C_d^*$  en fonction du rapport  $S_{lat}/A$ .

### CRITÈRE DE STABILITÉ

Le tableau 2 et la figure 5 permettent de classer les critères de stabilité obtenus pour les différents objets en fonction de leur forme, de leur état de surface et de leur orientation. Ces critères ont été calculés en assimilant les différents objets à des sphères de même volume (équations 6 à 8). Ce graphique permet donc pour un volume donné, de déterminer la géométrie et l'orientation nécessitant le plus faible seuil d'écoulement permettant la stabilité.

Pour un objet donné, et indépendamment de la rugosité, il apparaît que le critère de stabilité est plus faible dans la position pour laquelle le maître-couple est le plus élevé. L'orientation de l'objet joue donc un rôle quant à sa stabilité.

Le classement des différentes géométries dépend de la rugosité. Il faut un seuil plus élevé, pour maintenir un cylindre d'élanement 5 vertical, que pour maintenir un cube de même volume, lorsqu'ils ont une surface "lisse". Si les surfaces sont "rugueuses", il faut un seuil plus élevé pour stabiliser le cube. Les écarts les plus importants, entre surfaces "lisses" et "rugueuses", sont obtenus dans le cas du cylindre d'élanement 5 (50%), du cube (51%) et de la sphère (41%). Ces valeurs expliquent en partie la grande dispersion, environ un ordre de grandeur, concernant les valeurs proposées dans la littérature, (Chhabra, 1993). La grande majorité des résultats expérimentaux, proposés jusqu'à présent, a été obtenue avec des sphères "lisses", d'où les écarts importants par rapport aux valeurs obtenues par le calcul numérique. L'utilisation du critère de stabilité de la sphère, pour prédire la stabilité d'un autre objet, peut entraîner des écarts d'un facteur 2, notamment dans le cas du disque horizontal ou du cône.

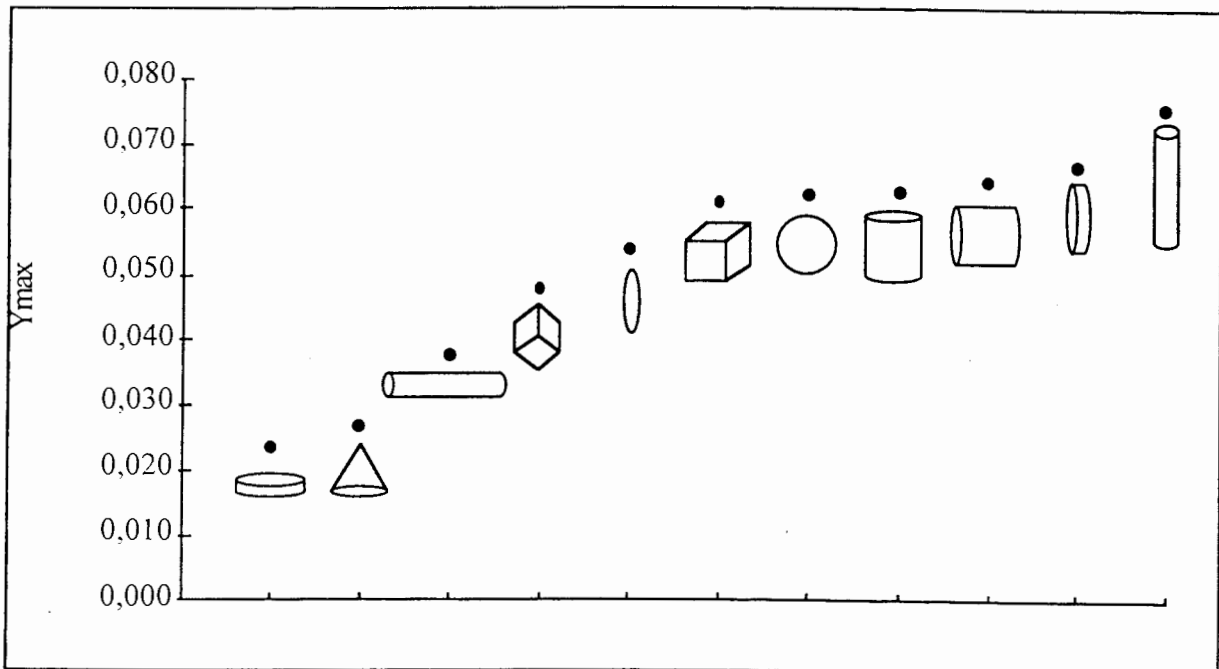


Figure 5 : Critère de stabilité des objets en fonction de leur forme et de leur orientation.

## CONCLUSIONS

Les résultats présentés ci-dessus apportent de nouvelles connaissances quant à la stabilité d'objets de géométries courantes (sphère, cube, cylindres, disque...) en fluide à seuil (Jossic et Magnin, 2000). Pour chaque géométrie, le coefficient de traînée, en conditions quasi-statiques, et un critère de stabilité, ont été estimés. Ces résultats ont été obtenus en contrôlant finement les paramètres fondamentaux de la stabilité. Tout d'abord, les mesures ont été effectuées dans le domaine quasi-statique, pour lequel les effets d'inertie sont négligeables par rapport aux effets de seuil. D'autre part, le seuil d'écoulement a été évalué avec précision. Pour cela, la caractérisation rhéométrique a été menée sur le domaine des taux de cisaillement mis en jeu en mode quasi-statique. Les conditions à l'interface fluide-objet ont également été

contrôlées. Ce paramètre n'avait encore jamais été pris en compte jusqu'à présent. Il est cependant un des paramètres essentiels de la stabilité. Ces trois aspects n'ayant jamais tous été simultanément contrôlés, la grande dispersion des valeurs proposées jusqu'à présent, dans le cas de la sphère, s'explique aisément. Notre approche permet tout d'abord, de proposer une estimation du coefficient de traînée, de différents objets, en fluide viscoplastique. Ce coefficient de traînée est construit en adimensionnalisant la force de traînée par le produit maître-couple seuil d'écoulement. La vitesse n'intervient pas dans cette expression, car dans le domaine des très faibles taux de cisaillement, les efforts de traînée subis par l'objet sont indépendants de la vitesse. Les courbes d'écoulement des gels expliquent ce phénomène. Aux faibles taux de cisaillement, les contraintes engendrées sont indépendantes de la vitesse, de l'ordre du seuil d'écoulement. Il est possible à partir des forces de traînée ainsi obtenues, d'estimer le critère de stabilité correspondant à une vitesse nulle. Le critère de stabilité d'un objet donné a été construit en l'assimilant à une sphère de même volume. Il est ainsi possible à partir des valeurs obtenues de déterminer, pour un volume donné, les formes nécessitant un seuil d'écoulement plus ou moins élevé pour qu'un objet soit stabilisé dans un fluide viscoplastique. Ces résultats, coefficient de traînée et critère de stabilité, ont été discutés en fonction de la géométrie des objets, du rapport des surfaces latérales au maître-couple, de leur orientation et de la rugosité. Pour certaines géométries, des écarts importants sur le critère de stabilité, pouvant aller jusqu'à 50%, selon que la surface est "lisse" ou "rugueuse", ont pu être enregistrés. Ces écarts sont probablement provoqués par le glissement du fluide à la paroi, pour les objets "lisses". Ce glissement a principalement lieu sur les surfaces latérales, il dépend donc de l'orientation de l'objet. Ces nouvelles données expérimentales sont d'autant plus intéressantes que jusqu'à présent les données concernant les objets non-sphériques étaient très parcellaires.

## REFERENCES

- Atapattu D. D., Chhabra R. P., Uhlherr P. H. T., "Creeping motion in Herschel-Bulkley fluids : flow field and drag." *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 59, pp 245-265, 1995.
- Beaulne M., Mitsoulis E., "Creeping motion of a sphere in tubes filled with Herschel-Bulkley fluids." *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 72, pp 55-71, 1997.
- Blackery J., Mitsoulis E., "Creeping motion of a sphere in tubes filled with a Bingham plastic material." *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 70, pp 59-77, 1997.
- Chhabra R. P., "Bubbles, drops and particles in non-newtonian fluids." CRC Press, 1993.
- Hariharaputhiran M., Subramanian R. S., Campbell G. A., Chhabra R. P., "The settling of spheres in a viscoplastic fluid." *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 79, pp 87-97, 1998.
- Jossic L., Magnin A., "Drag and stability of an object in yield stress fluid." soumis à l'AICHE, 2000.
- Magnin A., Piau J.M., "Shear rheometry of fluids with a yield stress." *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 23, pp 91-106, 1987.
- Magnin A., Piau J.M., "Cone and plate rheometry of yield stress fluids. Study of an aqueous gel." *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 36, pp 85-108, 1990.