

# THÈSE DE DOCTORAT

en vue de l'obtention du grade de

**Docteur de l'Université d'Aix-Marseille**

École Doctorale 353

Sciences pour l'ingénieur : Mécanique, Physique, Micro et Nanoélectronique

**IUSTI UMR CNRS 7343**

Présentée et soutenue publiquement le 26 Septembre 2016

par **M. Mathieu SOUZY**

---

## Mélange dans les suspensions de particules cisillées à bas nombre de Reynolds

---

Directeurs de Thèse : Mme. Nora CHÉRIFA ABID et M. Bloen METZGER

Devant le jury composé de :

Madame	Nora CHÉRIFA ABID	<i>Université d'Aix-Marseille</i>	Directrice de Thèse
Monsieur	Bloen METZGER	<i>CNRS</i>	Directeur de Thèse
Monsieur	Tanguy LE BORGNE	<i>CNAP</i>	Rapporteur
Monsieur	John HINCH	<i>Université de Cambridge</i>	Rapporteur
Madame	Elisabeth LEMAIRE	<i>CNRS</i>	Examinatrice
Monsieur	Emmanuel VILLERMAUX	<i>Université d'Aix-Marseille</i>	Examineur

Laboratoire IUSTI  
École Polytechnique Universitaire de  
Marseille  
5, Rue Enrico Fermi, Technopôle de  
Château-Gombert  
13453 Marseille

École Doctorale Sciences pour  
l'ingénieur : Mécanique, Physique,  
Micro et Nanoélectronique  
5, Rue Enrico Fermi, Technopôle de  
Château-Gombert  
13453 Marseille

---

## Remerciements

---

Je voudrais commencer par remercier le laboratoire IUSTI et tout son personnel, qui m'a accueilli et que j'ai pu côtoyer au cours de ces trois années de thèse. Merci à tout le personnel administratif, Delphine, Joyce, Jeanne, Didier, Dominique, Audrey, pour votre aide précieuse de ce côté là.

Merci à l'école doctorale ED353 et à son secrétaire, Pascal, qui s'est toujours montré disponible et à l'écoute concernant les multiples questions que j'ai pu lui poser à propos du dédale qu'est l'administration d'Aix-Marseille.

Merci aux membres de mon jury de thèse qui ont accepté de faire partie de ce jury et qui ont su soulever des questions scientifiques intéressantes en portant un regard nouveau sur ce travail de thèse. J'ai beaucoup apprécié les échanges que j'ai pu avoir avec chacun d'entre eux et la pertinence des remarques que j'ai pu recevoir de leur part. Merci en particulier à Emmanuel Villermaux pour la richesse des discussions que nous avons eu au cours de ces années, et d'où sortait inévitablement une multitude d'idées et de nouvelles expériences à réaliser.

Je tiens à remercier Nora pour son calme et pour le soutien précieux qu'elle m'a apporté au cours de cette thèse. Merci de m'avoir aidé en particulier à enjamber la barrière de l'enseignement pour passer de l'autre côté et découvrir les joies du rôle d'enseignant.

J'ai eu la grande chance de parcourir ce chemin (parfois périlleux) de la thèse en étant également encadré par Bloen. Sa patience, la clarté de ses explications et sa rigueur scientifique ont contribué plus que je ne saurai l'exprimer à me faire découvrir et apprécier le travail de recherche. Mais plus que tout, c'est la passion inaltérable qui l'anime lors de la conception et la réalisation d'expériences scientifiques qui auront rendu ses trois années de collaboration aussi agréables et enrichissantes à mes yeux. Un immense merci pour toutes ces qualités scientifiques et humaines et pour la patience qu'il a su déployer, notamment lors des phases de rédaction.

Un grand merci également aux équipes ICSD et GEP (Marc, Ouamar, Olivier, Laurence, Babeth, Yoël, Pascale, Gilles, Geoffroy, Maxime, Blanche...) avec lesquelles j'ai eu la chance d'interagir à de nombreuses reprises. Ils ont su rendre ce séjour à l'IUSTI riche d'apprentissages et de rencontres marquantes. Quel plaisir de côtoyer cette chaleur et la passion qu'ils ont à transmettre des connaissances autour d'eux. Je souhaite pouvoir continuer à échanger avec vous pour de nombreuses années encore, que ce soit dans un cadre scientifique ou pas!

Merci également à Henri, qui est arrivé au début de ma troisième année de thèse et qui s'est impliqué et intéressé aussitôt aux problématiques traitées dans ce manuscrit, en apportant son engouement caractéristique, sa pertinence et sa bonne humeur. Merci d'avoir soutenu mordicus que ces fameuses lois d'éirement devaient être exponentielles, et de nous avoir permis de sortir des méandres des lois de puissances!

Je voudrais faire part de ma gratitude également à tous les membres de l'atelier, Sady,

Paul et Fred, pour leur disponibilité et la grande qualité des dispositifs expérimentaux qui ont pu être réalisés grâce à leur soin. Sans eux, aucune des expériences réalisées au cours de cette thèse n'aurait été possible.

Mention spéciale pour les fanatiques de la piscine, ou plutôt des desserts de chez Colette qui venait immédiatement après, Jérôme et Blanche, et qui m'ont permis de souffler en milieu de journée. Jamais je n'aurai pensé enchaîner un jour les traversées de piscine en me demandant comment j'allai m'en sortir avec ces distributions log-normales !

Il me reste encore à remercier tous les autres thésards et post-doc ! Mathieu, François, Jeff, pour commencer, le trio des débuts, qui m'ont montré qu'une thèse ça passait aussi par des pauses café, des journées "bien remplies" (à moins que ça ne soit une coutume Corse Mathieu ?), une entraide constante entre thésards et des liens d'amitiés solides qui résistent aux années et aux kilomètres.

Des remerciements bien évidemment à tous les thésards et post-doc dont j'ai croisé la route au cours de ces années et avec lesquelles j'ai pu travailler, rire et échanger. Je pense à Joris, Antoine, Cécile, Franco, Yixian, Ouardia, Jon, Diego, Simon, Hugo, Sarah, sans oublier la team America, Saïf, Braden, Phong, Levy, et tant d'autres. Tous ont contribué à leur manière à remplir ces années de moments uniques et forts, permettant de prendre tous les matins le chemin du labo de bonne humeur.

Une pensée pour tous les amis extérieurs au labo qui m'ont permis de me détendre les soirs et les week-ends ; ils sont trop nombreux pour les citer tous, que ce soit les Varois ou la clique des microbiologistes de Joseph Aiguier !

Merci pour son support et son soutien à ma famille, qui n'a pas fini de me demander ce que je fais et à quoi ça peut bien servir ? Je ne serai jamais allé là où j'en suis sans vous tous.

Et enfin bien entendu, un immense MERCI à ma femme Sandra et à notre petit Nathan, pour le soutien indéfectible, l'affection, les rires, sourires, et fous rires qui jalonnent ma vie au quotidien à vos côtés.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1.1	Description générale des suspensions . . . . .	2
1.2	Cadre de l'étude : les suspensions de particules sphériques non-Browniennes cisailées à faible nombre de Reynolds . . . . .	6
1.3	Diffusion induite par cisaillement . . . . .	7
1.4	La diffusion induite par cisaillement : moteur de l'intensification des transferts	10
1.5	Problématique et plan du manuscrit . . . . .	12
<b>2</b>	<b>Techniques expérimentales</b>	<b>15</b>
2.1	Suspension iso-indice optique et iso-dense . . . . .	16
2.1.1	Les particules . . . . .	16
2.1.2	Le fluide suspendant . . . . .	16
2.1.2.1	Ajustement de la densité et de l'indice optique . . . . .	16
2.1.2.2	Propriétés rhéologiques du fluide . . . . .	19
2.2	Dispositif optique et visualisation . . . . .	20
2.2.1	Nappe laser . . . . .	21
2.2.2	Acquisition des images . . . . .	21
2.3	Le fluorochrome : Rhodamine 6G . . . . .	22
2.3.1	Absorption . . . . .	22
2.3.2	Mesure du coefficient de diffusion moléculaire $D_0$ . . . . .	23
2.4	Mesure des champs de vitesses par PIV . . . . .	24
2.5	Dispositifs expérimentaux . . . . .	26
2.5.1	Cellule de Couette cylindrique . . . . .	27
2.5.2	Cellule de cisaillement plan-plan . . . . .	29
2.6	Protocoles expérimentaux . . . . .	29
2.6.1	Expérience de Taylor dans une suspension de particules . . . . .	29
2.6.2	Dispersion et mélange dans une suspension de particules cisailées : effet des parois . . . . .	31
2.6.3	Caractérisation de la cinématique de déformation pour une meilleure compréhension du processus de mélange . . . . .	33
2.6.3.1	Première approche : analyse d'image . . . . .	34
2.6.3.2	Seconde approche : la 'Diffusive Strip Method' . . . . .	36
<b>3</b>	<b>Expérience de Taylor dans une suspension de particules cisailée de façon périodique</b>	<b>41</b>
3.1	Présentation de la lettre . . . . .	41
3.1.1	Résumé des résultats . . . . .	42
3.1.2	Questions ouvertes . . . . .	42
3.2	Copie de la Lettre . . . . .	42
<b>4</b>	<b>Dispersion et mélange dans une suspension de particules cisailée : effet des parois</b>	<b>49</b>
4.1	Présentation de l'article . . . . .	49

4.1.1	Résumé des résultats . . . . .	50
4.1.2	Questions ouvertes . . . . .	50
4.2	Copie de l'article . . . . .	51
<b>5</b>	<b>Cinématique de déformation dans une suspension cisailée : conséquences pour le mélange</b>	<b>59</b>
5.1	L'approche 'lamellaire' : désimbriquer l'effet de l'advection et de la diffusion moléculaire . . . . .	59
5.1.1	Temps de mélange pour un cisaillement simple . . . . .	60
5.1.2	Temps de mélange pour d'autres types d'écoulements . . . . .	62
5.2	Diffusive Strip Method . . . . .	63
5.3	Résumé des résultats . . . . .	64
5.4	Questions ouvertes . . . . .	65
5.5	Copie de l'article . . . . .	67
<b>6</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>91</b>
6.1	Conclusion . . . . .	91
6.2	Perspectives . . . . .	93
6.2.1	Mesure de l'évolution des distributions de concentration dans les suspensions cisillées . . . . .	94
6.2.1.1	Le problème de la résolution spatiale . . . . .	94
6.2.1.2	Photobleaching par la nappe de visualisation . . . . .	97
6.2.1.3	Apparition de 'halos' : l'excitation du colorant contenu en dehors du plan de la nappe laser . . . . .	97
6.2.2	Validation du montage sur un cas simple . . . . .	99
	<b>Bibliographie</b>	<b>103</b>

# CHAPITRE 1

---

## Introduction

---

Une suspension est un milieu constitué de particules solides dispersées dans un liquide suspendant. Les suspensions de particules constituent une classe de fluide complexe abondamment représentée. On les trouve dans l'industrie du génie civil (bétons, ciments), dans l'industrie pétrolière (boues de forage, fluides de fracturation), dans l'industrie alimentaire (lait, pâtes alimentaires) ou encore dans l'industrie du papier (boues de papier, suspensions de poudre de bois). Les suspensions sont aussi omniprésentes dans la nature. L'air que l'on respire est une suspension de particules. On trouve aussi des suspensions en géophysiques (laves torrentielles, trainées de boues), dans les océans (estuaires, plancton) mais aussi en biologie (jaune d'oeuf, colonie de bactérie, sang).



FIGURE 1.1 – Les suspensions, omniprésentes autour de nous.

Bien souvent, les suspensions sont le siège de phénomènes de transferts importants. Par exemple, le sang, qui est composé de globules rouges en suspension dans une phase continue de plasma, a pour fonction principale de transporter l'oxygène des poumons vers les organes. Dans l'industrie minière, les colonnes de flottation constituent un des dispositifs les plus importants pour l'extraction de minéraux. Les masses rocheuses concassées sont mises en suspension dans une colonne remplie d'eau où des bulles d'air sont injectées. Les espèces minérales hydrophobes sont séparées des composés hydrophiles par les bulles d'air. En métallurgie, pour fabriquer un alliage d'acier, des éléments d'addition (manganèse, nickel, chrome) sont injectés et mélangés dans une poche de fonte en fusion. Lorsque l'acier en fusion est mis en forme, la moindre hétérogénéité dans la fonte en fusion persistera après la solidification et produira des défauts mécaniques pouvant significativement détériorer les propriétés mécaniques de l'acier produit.

Il existe une littérature très abondante traitant des problèmes de transfert dans les fluides monophasiques turbulents ou laminaires (Baldyga [1], Ottino [2]). Ce problème a aussi largement été abordé dans les matériaux poreux (Le Borgne *et al.* [3], Kapoor *et al.* [4]). En revanche, la problématique du transfert d'un scalaire (chaleur ou masse) dans les suspensions de particules en écoulement a beaucoup moins été abordée. La présence d'inclusions solides dans le fluide et le couplage permanent entre l'écoulement et la microstructure des particules en font un système singulier qui nécessite pour le décrire de développer de nouvelles approches. Comme on le verra par la suite, la présence de particules induit des fluctuations dans le fluide qui contribuent à l'intensification des transferts. La compréhension de ce phénomène reste encore aujourd'hui très parcellaire et de nombreuses questions demeurent ouvertes.

La motivation générale de ce manuscrit est d'apporter une contribution à la compréhension des mécanismes de transferts dans les suspensions de particules en écoulement. Avant de développer cette problématique, je commencerai par présenter les mécanismes physiques principaux qui gouvernent la dynamique des suspensions de particules. Je présenterai ensuite le système modèle que nous avons choisi d'étudier qui, en fixant le cadre de cette étude, nous a permis d'isoler un des mécanismes identifié comme une source majeure de l'intensification des transferts dans les suspensions en écoulement.

## 1.1 Description générale des suspensions

Le comportement d'une suspension dépend de la nature des particules dispersées et de celle du fluide suspendant. Voici les phénomènes physiques les plus importants pouvant influencer le comportement des suspensions :

### L'inertie

L'inertie traduit la tendance à conserver sa vitesse. La notion d'inertie apparaît pour la première fois au 17<sup>ème</sup> siècle avec Galilé. C'est Kepler qui nommera le premier *inertie* la tendance d'un corps à s'opposer au mouvement, avant que Descartes ne propose une définition plus complète. Pour un fluide, lorsque l'on stoppe le mécanisme de mise en écoulement, il continue de s'écouler jusqu'à ce que sa quantité de mouvement s'épuise par dissipation visqueuse. Pour identifier l'importance relative des forces inertielles par rapport aux forces de dissipation visqueuse, on utilise le nombre (sans dimension) de Reynolds  $Re = \rho_f \dot{\gamma} d^2 / \eta_f$ , où  $\rho_f \equiv [\text{kg.m}^{-3}]$  est la masse volumique du fluide,  $\eta_f \equiv [\text{Pa.s}]$  sa viscosité dynamique,  $\dot{\gamma} \equiv [\text{s}^{-1}]$  le taux de cisaillement, et  $d \equiv [\text{m}]$  le diamètre des particules. Si le nombre de Reynolds est très petit devant l'unité, les forces inertielles dans le fluide sont négligeables et l'écoulement est régi par les équations de Stokes.

De façon analogue, le nombre de Stokes  $St = \rho_p \dot{\gamma} d^2 / \eta_f$ , avec  $\rho_p \equiv [\text{kg.m}^{-3}]$  la masse volumique des particules, compare l'inertie des particules par rapport aux effets de dissipation



visqueuse dans le fluide. S'il est très petit, les particules suivent localement le mouvement imposé par le fluide.



FIGURE 1.2 – Galileo Galilei (1564 – 1642), René Descartes (1596 – 1650) et l'effet de l'inertie sur le corps humain lors d'une brusque décélération.

### Forces de flottabilité

Une suspension soumise à un champ de pesanteur voit l'apparition de forces de flottabilité s'il y a une différence de densité entre les particules et le fluide suspendant. Des particules plus denses que le fluide sédimentent et se dirigent vers le fond, tandis que des particules moins denses crèment et remontent à la surface, sous l'effet de la poussée d'Archimède. L'importance des forces de sédimentation devant les forces de dissipation visqueuse est donné par le nombre d'Archimède  $Ar = gd^3\rho_f(\rho_p - \rho_f)/\eta_f^2$ , avec  $g \equiv [\text{m.s}^{-2}]$  l'accélération de pesanteur. Lorsque les densités des particules et du fluide sont très différentes, comme par exemple pour une bulle de gaz dans un liquide (colonnes à bulles) ou pour une particule solide dans un gaz (nuages de sable), les effets de gravité sont prépondérants.

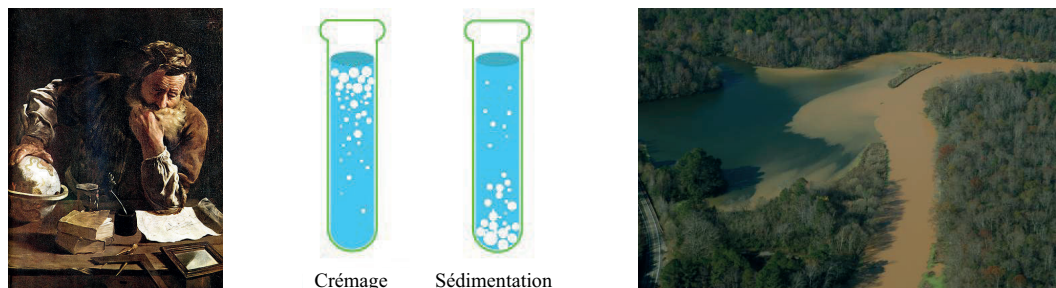


FIGURE 1.3 – Archimède de Syracuse (287 – 212 av. JC), crémage VS sédimentation, et boue en sédimentation dans la Black Warrior River (Alabama, USA).

### Forces colloïdales

Les particules dans une suspension peuvent être soumises à des forces attractives ou répulsives de courtes portées. Les forces attractives sont généralement des forces de type Van der Waals qui sont des interactions électriques de faible intensité dépendant de la nature des matériaux en présence. Des forces répulsives d'origine électrostatique apparaissent si les particules sont électriquement chargées : deux particules dont les surfaces ont des charges de même signe se repoussent mutuellement. Ces deux interactions, attractives et répulsives, qualifiées de *colloïdales* jouent un rôle important pour des particules typiquement de taille  $\leq 10\mu\text{m}$ .

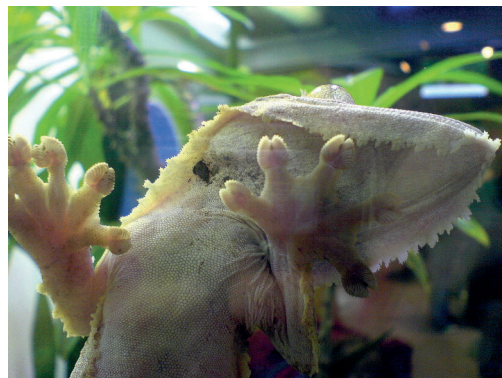


FIGURE 1.4 – Johannes Diderik van der Waals (1837 – 1923) et l’adhésion du gecko à une surface vitrée via les forces de Van der Waals. La structure fractale des orteils du gecko lui permet de supporter une charge de 40 fois sa masse.

## Interactions hydrodynamiques

La présence d’une particule au sein d’un écoulement modifie les lignes de courant du fluide environnant. Cette perturbation est transmise via le fluide et peut modifier la vitesse de particules voisines. Pour une particule dans un écoulement de cisaillement, la perturbation est donnée au premier ordre par le stresslet et l’amplitude de cette perturbation décroît comme  $1/r^2$ , avec  $r$  la distance à la particule (Kim & Karrila [5]), cf. Figure 1.5 (b). La lente décroissance de cette perturbation en  $1/r^2$  en fait une interaction longue portée.

Le terme *interactions hydrodynamiques* englobe aussi la force de lubrification qui intervient lorsque deux particules très proches l’une de l’autre sont sujettes à un mouvement relatif. Cette force permet alors d’évacuer ou d’approvisionner la fine couche de fluide interstitiel qui les sépare. Cette force de lubrification s’oppose au mouvement relatif des deux particules, elle est de courte portée et diverge lorsque la distance de séparation entre les surfaces des deux particules tend vers zéro.

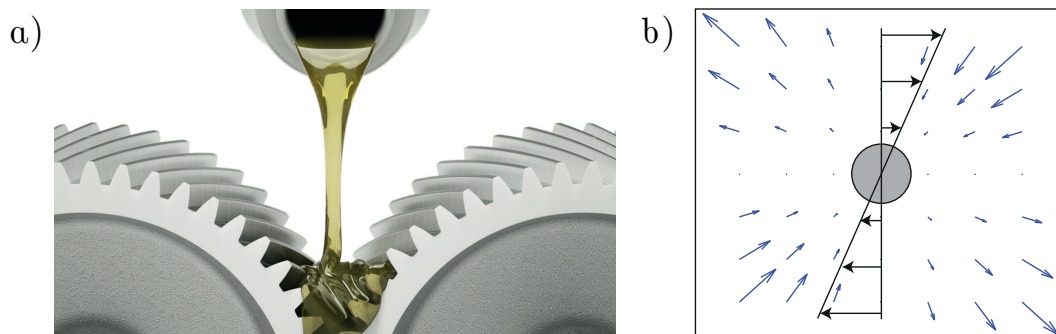


FIGURE 1.5 – a) Utilisation de lubrifiant industriel pour limiter la friction entre deux engrenages. b) Perturbation hydrodynamique longue portée au premier ordre (stresslet) générée par une particule rigide dans un écoulement de cisaillement.

## Contacts solides

Dans une suspension de sphères parfaitement lisses, les forces de lubrification empêchent les particules de venir au contact solide. En pratique, les particules ne sont pas infiniment lisses mais ont une rugosité finie. Il a été montré que la rugosité joue un rôle crucial car elle permet l’établissement de contacts solides entre les particules (Arp & Mason [6], Da Cunha & Hinch [7]).

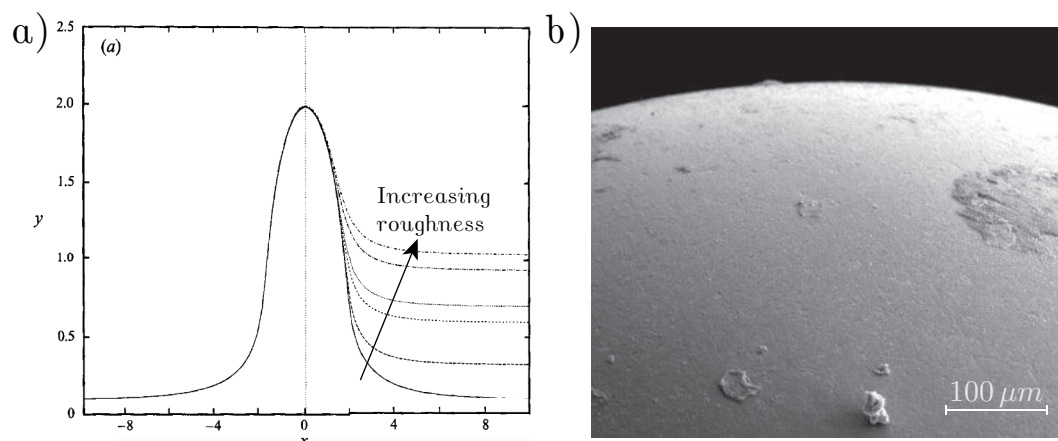


FIGURE 1.6 – a) Trajectoire relative d’une sphère par rapport à une autre, pour des rugosités croissantes (Da Cunha & Hinch [7]). b) Surface rugueuse des particules employées expérimentalement.

## Agitation thermique

Lorsque les particules sont suffisamment petites ( $\leq$  quelques  $\mu\text{m}$ ), les effets dus à l’agitation thermique deviennent importants : les particules diffusent alors aléatoirement dans le fluide suspendant, selon une trajectoire dite ‘Brownienne’. Le mouvement d’une particule de pollen dans l’eau est illustré sur la Figure 1.7. Ce mouvement universel et irrégulier de petits grains en suspension a été vu très tôt : dans “De rerum natura”, le poète Romain Lucretius observait déjà que les petites particules de poussière en suspension dans l’air bougent dans de multiples directions en l’absence d’écoulement [8]. L’apparition du microscope a grandement facilité l’observation du phénomène [9], et permis les premières observations scientifiques, non pas réalisées par le botaniste écossais Robert Brown — qui publia en 1828 ses propres observations [10] — mais par le français Adolphe Brongniart, en 1827.



FIGURE 1.7 – De gauche à droite : trajectoire d’une particule de pollen en suspension dans de l’eau, Titus Lucretius Carus ( $\sim 98 - 55$  av. JC), Adolphe Brongniart (1801 – 1876), et le botaniste écossais Robert Brown (1773 – 1858).

Au début du 20<sup>ème</sup> siècle, ce qui est appelé aujourd’hui *mouvement Brownien* est étudié par des physiciens tels que Einstein [11], Smoluchowski [12], Sutherland [13], Langevin [14], et Perrin [15]. Ils ont montré entre autre chose que le déplacement d’une particule soumise à un mouvement Brownien est caractérisé par un coefficient de diffusion  $D \equiv [\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$  :

$$\langle x(t)^2 \rangle = 2Dt \quad (1.1)$$

avec  $x$  la position de la particule,  $t$  le temps (à  $t=0$ ,  $x=0$ ), et  $\langle \cdot \rangle$  qui dénote une moyenne d’ensemble. Le coefficient de diffusion est directement relié à la température par la relation

de “Stokes–Einstein–Sutherland” :

$$D = \frac{k_B T}{6\pi R \eta_f} \quad (1.2)$$

avec  $k_B$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température,  $R$  le rayon des particules, et  $\eta_f$  la viscosité du fluide.

L’importance relative des mouvements d’advection induits par l’écoulement du fluide par rapport à l’agitation thermique est quantifiée par le nombre de Péclet des particules  $Pe_p = \dot{\gamma} d^2 / D$ . Si le nombre de Péclet est grand, le temps de diffusion moléculaire est grand devant le temps caractéristique de la déformation  $1/\dot{\gamma}$ .

## 1.2 Cadre de l’étude : les suspensions de particules sphériques non-Browniennes cisillées à faible nombre de Reynolds

Cette brève introduction montre qu’un grand nombre de phénomènes physiques peut influencer le comportement des suspensions de particules. Devant cette grande complexité, et comme la question des transferts dans les suspensions de particules a encore très peu été étudiée, j’ai choisi d’aborder ce problème en considérant le système le plus simple possible pour lequel :

- l’inertie du fluide est négligeable :  $Re \ll 1$  ;
- l’inertie des particules est négligeable :  $St \ll 1$  ;
- les effets de gravité sont négligeables :  $Ar \approx 0$  ;
- l’agitation moléculaire est négligeable :  $Pe_p \gg 1$  ;
- le fluide suspendant est un fluide Newtonien ;
- les particules sont rigides et monodisperses ;
- les seules interactions entre particules sont de type contacts solides et interactions hydrodynamiques.
- configuration d’écoulement : cisaillement simple.

Le système étudié est donc un ensemble de sphères dures non-Browniennes, advectées dans un écoulement de cisaillement simple comme schématisé sur la Figure 1.8. Dans un tel système, les seules interactions entre particules sont les interactions hydrodynamiques ainsi que les contacts solides ; les effets inertiels sont négligeables. Notons que ce dernier point (écoulement de Stokes) est particulièrement défavorable vis-à-vis du mélange [16]. Cela étant, travailler dans ces conditions spécifiques permet, comme on le verra par la suite, d’isoler un mécanisme physique très important à l’origine de l’intensification des transferts : la diffusion induite par cisaillement.

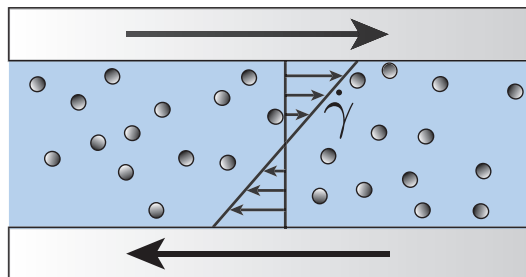


FIGURE 1.8 – Ecoulement d’une suspension iso-dense de sphères rigides non-Browniennes cisillée à faible nombre de Reynolds

## 1.3 Diffusion induite par cisaillement

### Cisaillement continu

Dans une suspension modèle, telle que décrite ci-dessus, le point important est que les particules ne peuvent pas s'interpénétrer. Lorsque sous l'effet du cisaillement deux particules viennent au contact solide, ces particules sont alors déviées de leur ligne de courant moyenne. Si l'on suit la trajectoire d'une particule donnée, on observe que cette particule est soumise à une série de déplacements perpendiculaires à la direction de l'écoulement [17, 18] illustré schématiquement sur la Figure 1.9 (a).

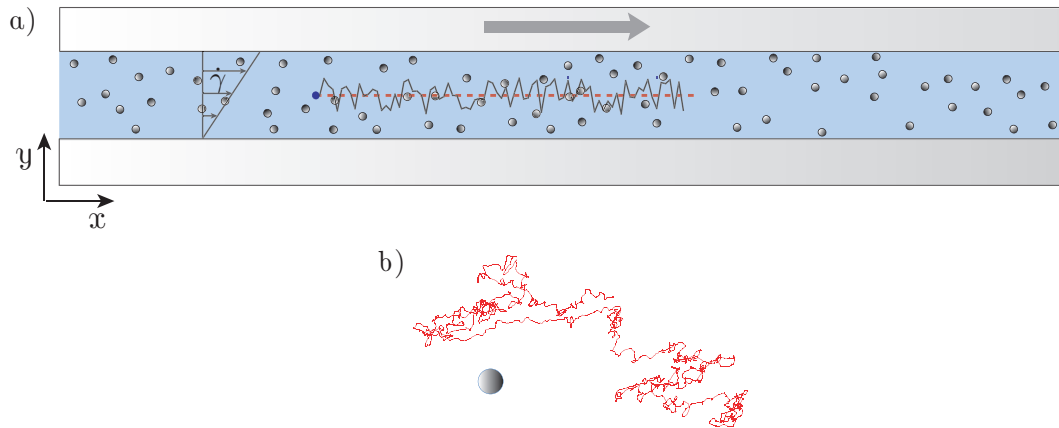


FIGURE 1.9 – a) Schéma illustrant la diffusion induite par cisaillement : les collisions successives entre particules induites par l'écoulement dévient celles-ci de leur trajectoire moyenne. b) Trajectoire non-affine d'une particule au sein d'une suspension cisailée (Metzger *et al.* [19]).

Si l'on reconstruit la trajectoire de cette particule en soustrayant la partie affine de l'écoulement, *i.e.* le déplacement de la particule dû à l'écoulement de cisaillement moyen, de manière à ne conserver que les fluctuations induites par les collisions entre les particules, on obtient typiquement la trajectoire présentée Figure 1.9 (b). Cette trajectoire non-affine possède toutes les caractéristiques d'une trajectoire diffusive. Le point remarquable est que ce processus de diffusion est particulier car il n'est pas d'origine thermique; les particules sont en effet non-Browniennes ( $Pe_p \gg 1$ ). Cette diffusion naît des collisions successives entre les particules, qui sont elles-même induites par la mise en écoulement de la suspension. On appelle donc ce phénomène : *diffusion induite par cisaillement*.

Ces mouvements aléatoires des particules génèrent des fluctuations d'écoulement qui vont influencer sur les propriétés de transfert de la suspension. En 1977, Eckstein *et al.* s'intéressent les premiers à ce problème afin de mieux comprendre le transport anormal de l'oxygène dans le sang [20]. Pour cela, ils commencent par étudier le phénomène de diffusion induite par cisaillement dans une suspension modèle. Eckstein propose que l'agitation des globules rouges dans le sang, et l'intensification des transferts qui en résulte, devraient permettre de réduire significativement la taille des dispositifs permettant l'oxygénation du sang.

Cette étude a principalement attiré l'attention de la communauté des rhéologues qui étudient les suspensions de particules. Le comportement diffusif des particules induit en effet dans les écoulements inhomogènes des effets de migration des particules qui affectent profondément la rhéologie de ces systèmes [21–25]. Un grand nombre de travaux vont alors être dédiés à la caractérisation de la diffusion induite par cisaillement. Par exemple, Leighton & Acrivos réalisent en 1987 des études expérimentales de référence [18,26], où ils déterminent le coefficient de diffusion de particules de 389 et 645  $\mu\text{m}$  de diamètre, dans la cellule de Couette présentée Figure 1.10 (a). Ils observent que le coefficient de diffusion des particules

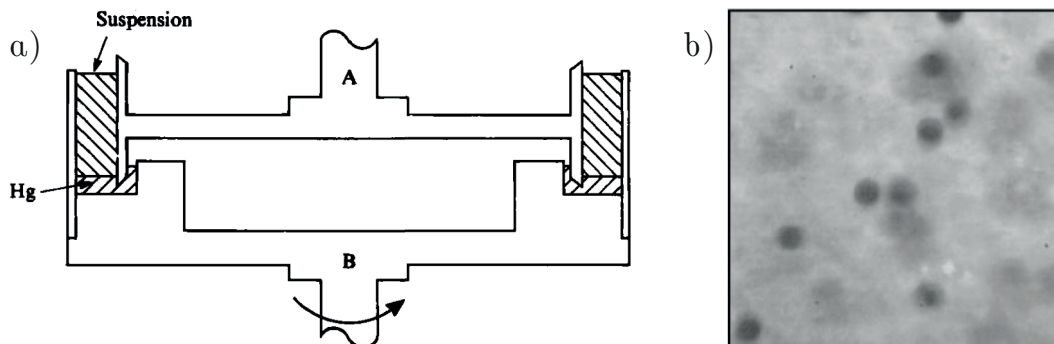


FIGURE 1.10 – a) Cellule de Couette employée par Leighton *et al.* [18] b) Visualisation obtenue par Breedveld d'une suspension à  $\phi = 30\%$  de particules de  $90 \pm 15 \mu\text{m}$  de diamètre, extrait de Breedveld *et al.* [32].

est proportionnel au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et au carré du diamètre des particules employées. Ils trouvent aussi que la diffusion des particules augmente avec la fraction volumique  $\phi$ . Ces dépendances du coefficient de diffusion des particules peuvent être retrouvées par analyse dimensionnelle : les paramètres importants du problème sont le taux de déformation  $\dot{\gamma}$ , à partir duquel on peut construire une échelle de temps  $1/\dot{\gamma}$ , le diamètre des particules  $d$  qui est la seule échelle de longueur du système, et la fraction volumique  $\phi$  qui est sans dimension. Dimensionnellement, le coefficient de diffusion s'écrit :

$$D = f(\phi)\dot{\gamma}d^2. \quad (1.3)$$

La question de la détermination de  $f(\phi)$  a été largement abordée, que ce soit de façon théorique, expérimentale ou numérique. Bien que la littérature s'accorde sur une augmentation de  $f$  avec  $\phi$  comme illustré Figure 1.11, les résultats reportés sont dispersés, et la question de la tendance de  $f(\phi)$  demeure encore ouverte aujourd'hui. Plusieurs facteurs expliquent cette dispersion des résultats : Wang *et al.* [27] considèrent par exemple dans leur travail analytique des sphères lisses, tandis que Da Cunha & Hinch [7] décrivent l'interaction entre deux sphères rugueuses en supposant que les aspérités à la surface des particules exercent une force normale entre les sphères qui régularise les forces de lubrification. Expérimentalement [28–30], les techniques d'observation varient d'une étude à l'autre : Breedveld *et al.* [31–34] emploient des techniques d'iso-indice optique leur permettant de suivre au sein de l'écoulement un faible pourcentage de particules colorées en noir, cf. Figure 1.10 (b), tandis que Metzger *et al.* [19] suivent à l'aide de technique de fluorescence le déplacement de toutes les particules présentes dans le plan d'une nappe laser. Dans les simulations numériques basées sur les codes de dynamique Stokesienne (développés par Foss & Brady [35] et Sierou & Brady [36]), Marchioro & Acrivos [37] obtiennent le coefficient de diffusion des particules pour des suspensions comprenant jusqu'à 64 particules pour différentes fractions volumiques ( $0.15 \leq \phi \leq 0.45$ ), révélant des effets de confinement discutés également dans les simulations de Sierou & Brady [38] contenant jusqu'à 1000 particules.

Considérons le cas d'une suspension de particules de 1 mm de diamètre, placée dans un écoulement de cisaillement avec un taux de déformation  $\dot{\gamma} \approx 10 \text{ s}^{-1}$  (typique des écoulements de boues ou de ciments). En prenant pour  $f(\phi) = 0.01$  (valeur typique reportée sur la Figure 1.11), le coefficient de diffusion des particules vaut alors  $D \approx 10^{-7} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ , soit environ 1000 fois la valeur typique du coefficient de diffusion moléculaire d'une espèce chimique dans l'eau ( $\sim 10^{-10} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ). En décrivant la diffusion induite par cisaillement comme une diffusion effective, on peut s'attendre à ce que son effet soit très significatif devant celui de la diffusion moléculaire.

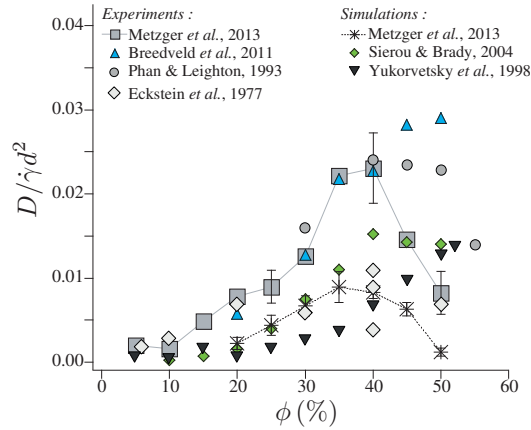


FIGURE 1.11 – Coefficient normalisé de diffusion induite par cisaillement dans la direction transverse à l'écoulement en fonction de la fraction volumique, adapté de Metzger *et al.* [19] et de Breedveld *et al.* [32].

### Cisaillement oscillant

Une manière astucieuse de directement observer le phénomène de diffusion induite par cisaillement consiste à appliquer un cisaillement périodique — au lieu d'un cisaillement continu — et d'observer le système de façon stroboscopique à la fin de chaque cycle de cisaillement. Dans cette configuration, la partie affine (réversible) de l'écoulement s'annule à la fin de chaque cycle : seules les fluctuations induites par les collisions entre particules sont conservées.

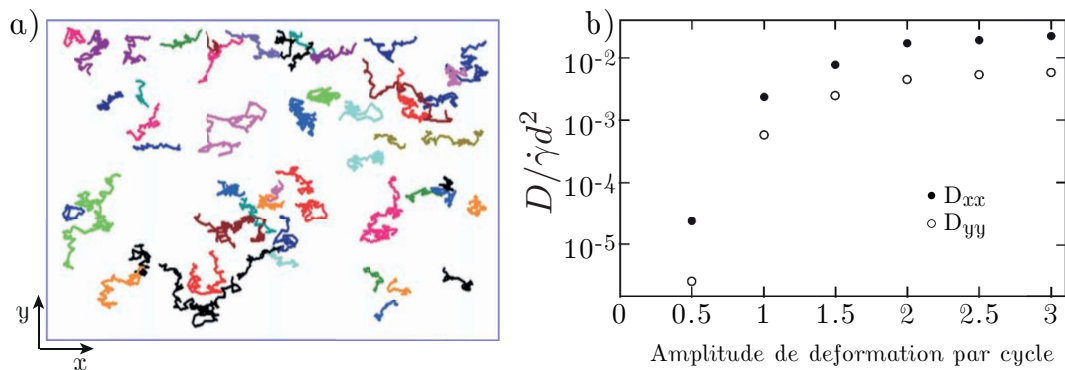


FIGURE 1.12 – a) Trajectoires stroboscopiques de particules (extrait de Gollub & Pine [39]). b) Coefficient de diffusion dans les 2 directions du plan de cisaillement, extrait de Pine *et al.* [40]. Au-delà d'une amplitude critique de déformation, une transition de phase est observée et le coefficient de diffusion des particules connaît une croissance très importante.

Cette configuration a été étudiée par Pine *et al.* [40] en 2005, et ils ont mis en évidence une transition intéressante : pour des cycles de faible amplitude, la suspension s'auto-organise [41] et le système relaxe vers un état absorbant réversible ; les particules retournent à leur position initiale à la fin de chaque cycle de cisaillement. En revanche, au-delà d'une déformation critique — qui dépend de la fraction volumique — le système transite vers un état fluctuant irréversible et les particules ne reviennent plus à leur position initiale mais sont sujettes à un mouvement aléatoire de type diffusif, cf. Figure 1.12 (a). Pour caractériser cette agitation des particules, Pine *et al.* ont mesuré leur coefficient de diffusion qui au-delà de la déformation critique augmente brutalement sur plusieurs ordre de grandeur, cf. Figure 1.12 (b). Un film

stroboscopique réalisé par Pine *et al.* d'une suspension de particules cisailée au-delà de l'amplitude critique est disponible dans la vidéothèque, cf. Chapitre1-Movie1.

L'origine de cette irréversibilité a récemment fait l'objet d'une controverse. Initialement, l'origine de la diffusion induite par cisaillement était attribuée à la présence de contacts solides entre particules résultant de la rugosité finie des particules (Arp & Mason [6], Da Cunha & Hinch [7]). Cela étant, un autre scénario fut proposé par Drazer *et al.* [42] basé sur une approche purement hydrodynamique où les particules n'interagissent que via le fluide. La diffusion des particules est alors expliquée, comme en sédimentation (Janosi *et al.* [43]), par la nature chaotique des interactions hydrodynamiques longues portées [37, 40, 44]. Dans ce type de système, toute source de bruit (numérique, Brownien etc...) est amplifiée et doit conduire à un comportement irréversible bien que les équations du mouvement soient réversibles. Un consensus large semble maintenant être établi sur le fait que les contacts solides entre particules sont à l'origine de cette transition. Dans un premier temps, Blanc *et al.* [45] ont montré expérimentalement et numériquement en cisaillement continu que les contacts entre particules induisent une anisotropie de la fonction de distribution de paire, *i.e.* la probabilité qu'une particule se trouve dans le quadrant de compression ( $xy < 0$ ) est plus grande que dans le quadrant de dilatation ( $xy > 0$ ), illustré Figure 1.13. Dans un second temps, des études récentes à la fois numériques (Metzger *et al.* [46, 47]) et expérimentales (Phong *et al.* [48]) ont montré en configuration de cisaillement périodique que la transition de phase vers un état irréversible est induite par les contacts solides entre particules. Phong *et al.* [49] ont montré que l'amplitude critique de déformation dépend fortement de la rugosité des particules, indiquant ainsi le rôle prépondérant des contacts.

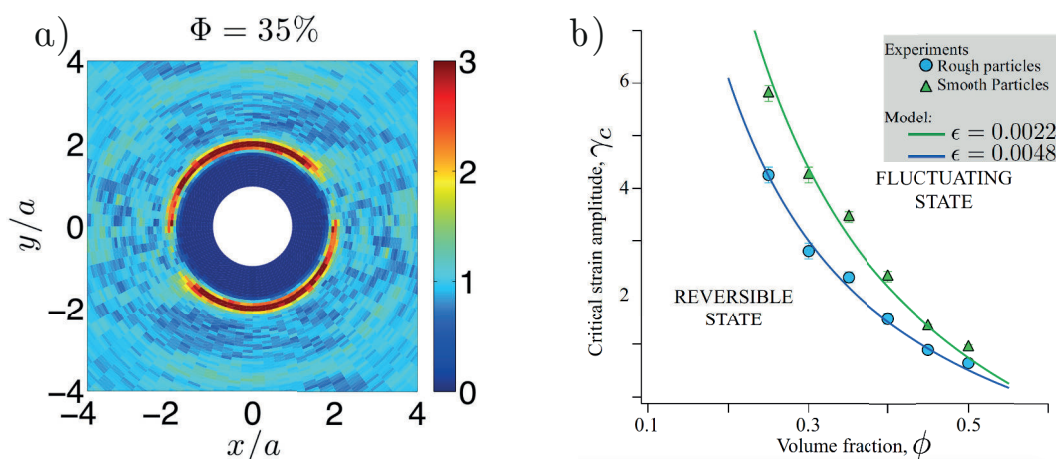


FIGURE 1.13 – a) Fonction distribution de paire expérimentale pour  $\phi = 35\%$ , extrait de Blanc *et al.* [50]. On observe un excès de particules dans le quadrant en compression ( $xy < 0$ ), ainsi qu'une zone de déplétion dans le quadrant de dilatation ( $xy > 0$ ). b) Amplitude de déformation critique en fonction de la fraction volumique  $\phi$ , pour des particules de rugosité différentes, extrait de Phong *et al.* [49].

## 1.4 La diffusion induite par cisaillement : moteur de l'intensification des transferts

Comme nous venons de le voir, un grand nombre d'études ont été consacrées à la caractérisation de la diffusion induite par cisaillement. En revanche, un nombre beaucoup plus limité a abordé la question originelle qui a motivé ces travaux, qui est celle de l'intensification des transferts induite par la présence des particules. Dans les suspensions cisillées, du fait de la diffusion induite par cisaillement, les particules peuvent être vues comme au-



tant de petits agitateurs dans le fluide qui doivent conférer à l'écoulement une composante stochastique génératrice de mélange. Les questions qui ont été abordées sont les suivantes : comment cette agitation modifie-t-elle les propriétés de transfert du système ? Quelle est l'influence de la taille des particules ? de la fraction volumique  $\phi$  ? du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  ?

En se basant sur les échelles de temps ( $1/\dot{\gamma}$ ) et de longueur ( $d$ ) introduites précédemment, nous avons vu que l'on peut construire une échelle de diffusion  $\dot{\gamma}d^2$ . Dimensionnellement, le coefficient de diffusion qui décrit le transport d'un scalaire au travers d'une suspension cisailée doit s'écrire  $D_{\text{eff}}/D_0 = f(\phi) \times (\dot{\gamma}d^2/D_0)^n = f(\phi)Pe^n$ , avec  $D_0$  le coefficient de diffusion du scalaire lorsque la suspension est au repos.

Sohn & Chen [51] ont étudié le transfert de chaleur au travers d'une suspension en variant la fraction volumique et la taille des particules, dans une géométrie de cellule de Couette annulaire. Ils ont mesuré une augmentation du transfert lorsque la suspension est soumise à un cisaillement ( $\gtrsim 400\%$ ). Cette augmentation est caractérisée par un coefficient de diffusion effectif plus important que le coefficient de diffusion thermique de la suspension au repos. Leurs résultats expérimentaux suggèrent que  $D_{\text{eff}} \sim Pe^{1/2}$  pour  $Pe \geq 300$ . Shin & Lee [52] ont étudié des suspensions diluées ( $\phi < 10\%$ ) de particules pour des tailles variant de 25 à 300  $\mu\text{m}$ . Leurs mesures expérimentales sont réalisées dans une cellule de Couette cylindrique, en appliquant une différence de température de  $\approx 8^\circ\text{C}$  entre les parois et en mesurant le flux de chaleur entre les parois. Ils observent une augmentation du coefficient de diffusion effectif avec le taux de cisaillement et le diamètre des particules, ainsi que la présence d'un plateau asymptotique pour les forts taux de cisaillement, voir Figure 1.14 (a).

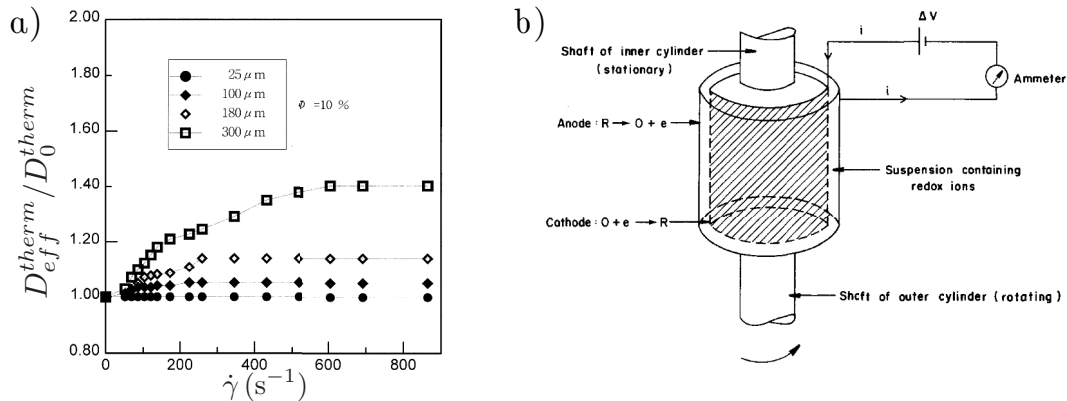


FIGURE 1.14 – a) Coefficient de diffusion thermique en fonction du taux de cisaillement pour différentes tailles de particules, Shin & Lee [52]. b) Dispositif expérimental employé par Wang & Keller [53] pour mesurer le transport d'ions au travers d'une suspension cisailée.

Wang & Keller [53] ont utilisé une méthode électro-chimique pour mesurer le transport d'ions au travers d'une suspension d'erythrocytes dans une configuration de Couette cylindrique, illustrée Figure 1.14 (b). Ils ont observé une augmentation du taux de transport telle que  $D_{\text{eff}} \sim Pe^\beta$ , avec  $\beta$  dans la gamme 0.71–1.06 selon la fraction volumique et la rigidité des particules. Employant la même technique expérimentale mais pour une suspension modèle de particules non-Browniennes, Wang *et al.* [54] ont proposé une étude très intéressante dans laquelle ils proposent un modèle décrivant l'influence des parois. Leur argument est le suivant : à proximité d'une paroi, l'agitation des particules étant frustrée par effet stérique, le coefficient de diffusion translationnelle des particules doit s'annuler. Leur modèle décrit la suspension en deux couches distinctes : le cœur de la suspension où l'agitation des particules est importante, et la couche limite en proche paroi dont l'épaisseur est d'environ un diamètre de particule où le transport se fait uniquement par diffusion moléculaire. Le profil de diffusivité proposé est illustré sur la Figure 1.15 (a).

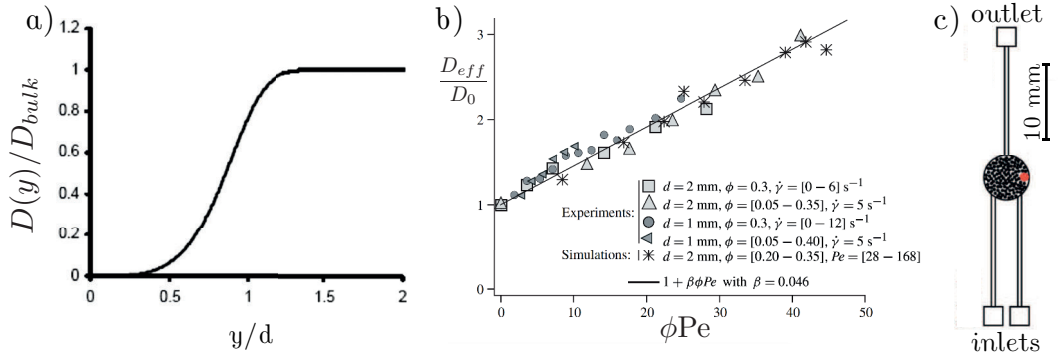


FIGURE 1.15 – a) Profil de diffusivité normalisé par la diffusivité du ‘bulk’, extrait de Wang *et al.* [54]. b) Coefficient effectif de diffusion thermique en fonction de  $\phi Pe$  obtenu expérimentalement et numériquement pour différentes tailles de particules, différent taux de cisaillement et différente fraction volumique (Metzger *et al.* [19]). c) Schéma du mélangeur micro-fluidique à faible perte de charge proposé par Workamp *et al.* [55] reposant sur la diffusion induite par cisaillement.

Metzger *et al.* [19] ont étudié le transfert de chaleur au travers d’une suspension de particules non-Browniennes cisailée dans une cellule de Couette cylindrique, en mesurant l’évolution de la température lorsqu’une impulsion thermique est appliquée sur l’une des parois de la cellule. Ils ont réalisé une étude systématique en variant la fraction volumique, le taux de cisaillement, le diamètre des particules, et en couplant leurs mesures expérimentales à des simulations numériques reposant sur une méthode de type Lattice Boltzmann. Ils montrent que toutes leurs données se regroupent sur une courbe maîtresse, présentée Figure 1.15 (b), bien décrite par  $D_{eff}/D_0 = 1 + 0.046 \phi Pe$  pour les fractions volumiques  $\phi \leq 40\%$ . Plus récemment, Workamp *et al.* [55] ont élaboré un mélangeur micro-fluidique astucieux basé sur la diffusion induite par cisaillement, schématisé Figure 1.15 (c). Les fluides à mélanger sont injectés dans une large chambre remplie de particules mises en mouvement par un barreau magnétique. La présence des particules conduit à une homogénéisation plus rapide des deux fluides. L’avantage de ce dispositif microfluidique est qu’il assure un mélange efficace tout en assurant une faible perte de charge.

Les études présentées ci-dessus montrent que la présence de particules dans un fluide cisailé contribue significativement à l’intensification des transferts ( $\gtrsim 400\%$ , Sohn & Chen [51]). Cependant, ces études ont toutes adopté une approche ‘‘macroscopique’’ en traitant la suspension tel un milieu effectif ayant une diffusivité effective; la question étant de savoir quel est le coefficient de diffusion effectif qui permet de décrire le transport d’un scalaire (masse, chaleur) au travers d’une suspension cisailée. À notre connaissance, aucune étude n’a encore tenté de caractériser ce problème à l’échelle de la taille des particules. Cette absence d’étude provient probablement d’une difficulté expérimentale : les suspensions de particules sont généralement opaques. Cela étant, des techniques d’iso-indice optique performantes ont récemment été développées (Dijksman *et al.* [56]) permettant de faire des visualisations dans le cœur de la suspension. Au cours de cette thèse, je me suis appuyé sur ces techniques expérimentales afin de caractériser les processus de mélange dans les suspensions cisillées de particules sphériques non-Browniennes s’écoulant à faible nombre de Reynolds.

## 1.5 Problématique et plan du manuscrit

Les suspensions de particules, omniprésentes dans la nature comme dans l’industrie, sont souvent le siège de phénomènes de transferts importants, comme par exemple le transport de l’oxygène dans le sang. Dans l’industrie, la maîtrise des protocoles de mélange impliquant des suspensions, par exemple pour la fabrication de l’acier, est essentielle pour la qualité

des produits manufacturés. Malgré ces enjeux importants, le problème du transfert ou du mélange d'un scalaire dans les suspensions cisailées a très peu été abordé.

Dans cette thèse, l'objectif est d'étudier ce problème dans le cas d'une suspension modèle de particules sphériques, rigides, non-Browniennes s'écoulant à faible nombre de Reynolds. Ce système permet d'isoler un mécanisme majeur à l'origine de l'intensification des transferts : la diffusion induite par cisaillement. L'objectif ici est de comprendre et de caractériser les processus de mélange à l'échelle de la taille des particules. Cette approche est aujourd'hui accessible grâce au développement récent de techniques d'iso-indice optique permettant de rendre les suspensions transparentes et de visualiser les processus de mélange en leur sein. Un grand nombre de questions nouvelles peuvent alors être abordées : quel est l'effet de la présence de particules sur la dispersion d'une goutte de colorant dans un cisaillement simple ? Qu'advient-il de la réversibilité de l'expérience de Taylor dans une suspension de particules ? Quelle est l'influence des parois ? La diffusion moléculaire est-elle bien le seul processus de transfert dans cette zone ?

Les questions posées ci-dessus seront aussi abordées sous un angle différent, à savoir étudier les propriétés de mélange des suspensions de particules en s'intéressant au processus d'homogénéisation d'un scalaire. La question importante est de comprendre comment un système initialement ségrégué, *i.e.* partant d'une distribution de concentration donnée, s'homogénéise ? Peut-on par exemple en caractérisant la cinématique de déformation de la phase fluide, déterminer les lois d'étirement à l'origine du processus de mélange et en déduire la durée du processus d'homogénéisation ?

Dans cette thèse, ces questions ont été abordées avec une approche expérimentale. Je présenterai donc dans le Chapitre 2 les techniques expérimentales employées. Je présenterai en particulier le protocole permettant de réaliser des suspensions de particules transparentes et iso-denses. Je décrirai aussi en détails les méthodes de visualisation, ainsi que les dispositifs et protocoles expérimentaux. Les chapitres suivants seront consacrés aux trois études expérimentales, réalisées dans des configurations distinctes, qui nous ont permis d'aborder les questions posées ci-dessus.

- ✓ Dans le Chapitre 3, j'ai d'abord étudié l'effet de la perte de réversibilité, caractéristique des suspensions cisailées de façon périodique, sur la dispersion d'une goutte de colorant. Cette étude revisite l'expérience bien connue de G.I. Taylor (1966) mais cette fois en présence de particules. Les résultats obtenus seront présentés essentiellement sous la forme d'une Lettre à paraître dans *Physical Review Fluids*.
- ✓ Le Chapitre 4 est consacré au processus de transfert d'un scalaire en proche paroi. Cette étude nous a permis de réaliser des visualisations directes et de caractériser le transport d'un scalaire de la paroi vers le bulk de la suspension. Nous avons mis en évidence le rôle important joué par la rotation des particules, particulièrement en proche paroi. La rotation des particules a pour effet de briser la couche limite diffusive (proposée par Wang *et al.* [54]) par un effet de "rolling-coating" qui convecte le scalaire directement de la paroi vers le bulk de la suspension. Ce travail a été publié dans *Physics of Fluids*.
- ✓ Le Chapitre 5 détaille la dernière étude qui constitue probablement la contribution la plus importante de cette thèse. La transparence des suspensions obtenues et la haute résolution des visualisations, nous a permis de déterminer le champ d'advection de la phase fluide, débloquent ainsi l'accès à l'approche dite "lamellaire". Grâce à des mesures du champ de vitesses de la phase fluide, nous avons pu complètement caractériser sa cinématique de déformation. Ces résultats déterminent entièrement le processus de mélange induit par la présence des particules dans un fluide cisailé. Le modèle d'étirements multiplicatifs proposé permet de décrire quantitativement les lois d'étirement. Les conséquences de ces lois d'étirement sur le temps de mélange sont enfin discutées. Les résultats seront présentés essentiellement sous la forme d'un article soumis à *Journal of Fluid Mechanics*.

Finalement, le dernier Chapitre permettra de résumer les résultats obtenus au cours de cette thèse et de proposer des perspectives de recherche future.



---

### Techniques expérimentales

---

La motivation principale de cette thèse est de caractériser le mélange à l'échelle des particules. Cela nécessite de pouvoir visualiser la dynamique d'un scalaire au cœur d'une suspension, la difficulté étant que les suspensions sont généralement opaques. Des techniques d'ajustement d'indice optique du fluide ont récemment connu un fort développement et permettent de rendre la suspension quasi-transparente. Dans ce chapitre je présenterai en détails ces techniques qui, comme l'illustre la Figure 2.1, sont difficiles à maîtriser. Un ajustement approximatif de l'indice optique ne suffit pas, et de nombreux autres éléments doivent être maîtrisés : absence de bulles, contrôle des paramètres d'acquisition, nappe laser fine et homogène, iso-densité de la suspension, qualité des particules employées, concentration en colorant...

Dans une première section, j'introduirai en détails le protocole pour parvenir à une suspension transparente iso-indice optique. Ensuite je présenterai dans une seconde section le dispositif optique et la visualisation. La troisième section du chapitre est consacrée au colorant fluorochrome employé dans les expériences. Je discuterai dans la quatrième section des mesures de champs de vitesses réalisées par PIV. Je présenterai ensuite en détails les deux dispositifs expérimentaux conçus, puis pour finir les trois protocoles spécifiquement développés pour répondre aux différentes questions abordées dans ce manuscrit.

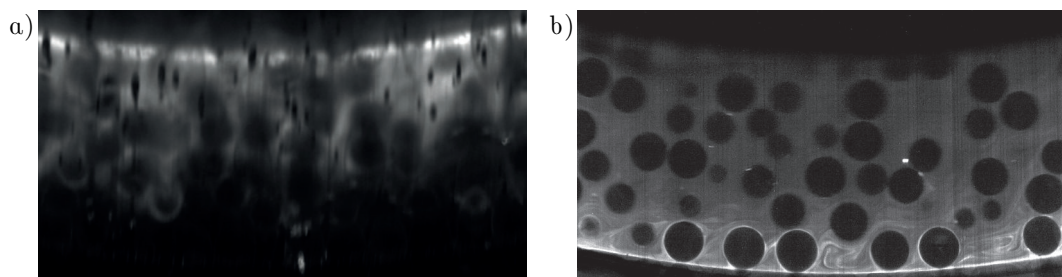


FIGURE 2.1 – Clichés illustrant : a) un mauvais ajustement de l'indice optique et la présence de bulles, b) un bon iso-indice optique et des conditions expérimentales maîtrisées.

## 2.1 Suspension iso-indice optique et iso-dense

L'objectif de ma thèse est de visualiser le mélange à l'échelle des particules, ce qui a nécessité de développer un protocole permettant de rendre la suspension transparente. Une contrainte supplémentaire est qu'il faut aussi s'affranchir de la sédimentation des particules et donc ajuster la densité des particules avec celle du fluide. Il nous faut donc une suspension à la fois iso-indice et iso-densité. Je présente dans la suite les particules, le fluide, et enfin le protocole de préparation du fluide ainsi que ses propriétés rhéologiques.

### 2.1.1 Les particules

Les particules employées sont des sphères de PMMA (polyméthacrylate de méthyle) provenant de Engineering Laboratories Inc, dont des clichés pris au Microscope Electronique à Balayage (MEB) sont présentés Figure 2.2. Ces particules monodisperses de diamètre  $d = 2\text{mm}$  ont une densité  $\rho = 1.188\text{kg.m}^{-3}$ , et proviennent toutes du même lot. Elles ont été spécifiquement choisies pour leur bon état de surface et leur homogénéité : l'absence de défaut à l'intérieur des particules ou sur leur surface augmente la qualité de l'ajustement de l'indice optique.

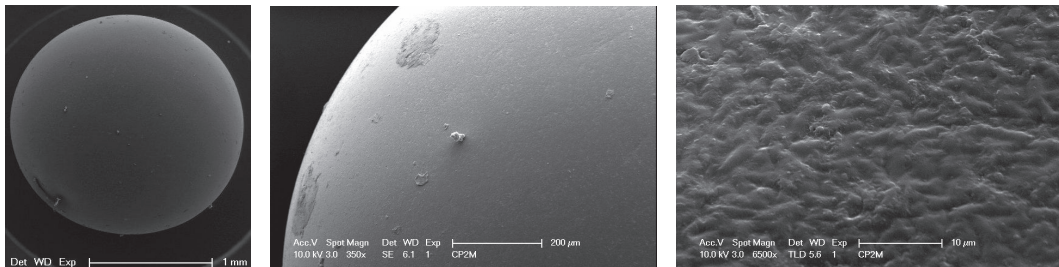


FIGURE 2.2 – Clichés MEB d'une particule, pour différents grossissements.

### 2.1.2 Le fluide suspendant

Le fluide suspendant doit satisfaire à plusieurs critères :

- la suspension doit être transparente, il faut donc choisir un fluide ayant le même indice de réfraction optique que les particules,
- il faut éviter que les particules ne sédimentent, et donc réaliser une suspension iso-dense,
- le fluide doit être Newtonien et suffisamment visqueux pour être dans les conditions de Stokes ( $Re \ll 1$ ).

L'ajustement de l'indice optique *et* de la densité du fluide nécessite d'utiliser une mixture réalisée à partir de 3 composants [57]. Krishnan *et al.* [58] ont proposé en 1996 une mixture satisfaisant ces critères pour une suspension de particules de PMMA, à base de Triton X-100 (77.93 %*m*), de Chlorure de Zinc  $\text{ZnCl}_2$  (9.01 %*m*), et d'eau (13.06 %*m*). Cela étant, l'indice optique et la densité des particules peut légèrement varier d'un fournisseur à l'autre [56]. Dans les paragraphes suivants, je présente comment, en partant des proportions proposées par Krishnan, nous avons ajusté la proportion de chacun des composants du fluide afin d'en ajuster l'indice et la densité.

#### 2.1.2.1 Ajustement de la densité et de l'indice optique

Le fluide suspendant est constitué de 3 composants, ce qui permet d'ajuster à la fois son indice de réfraction et sa densité. L'ajout du Chlorure de Zinc permet principalement d'augmenter la densité de la mixture, l'ajout de l'eau diminue principalement l'indice de

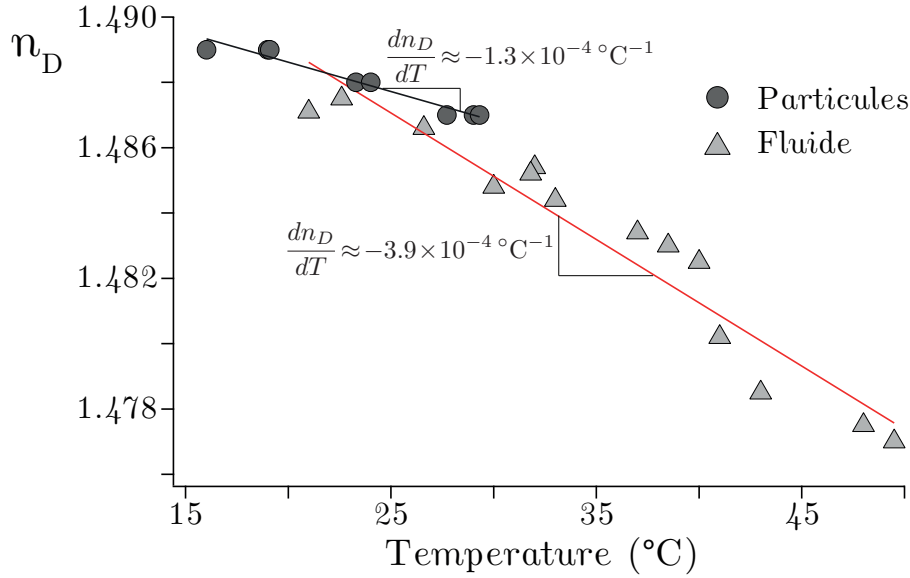


FIGURE 2.3 – Indice de réfraction optique  $n_D$  des particules de PMMA (extrait de Wiederseiner *et al.* [57]), et du fluide suspensé. La température d'iso-indice optique se trouve à l'intersection des deux courbes.

réfraction optique. Outre la composition de la mixture, pour ajuster l'indice optique, nous disposons d'un levier supplémentaire qui est la température. Lorsque la température est augmentée, l'indice de réfraction du fluide diminue plus vite que l'indice de réfraction des particules. Comme illustré Figure 2.3, il existe une température optimale, à l'intersection des 2 courbes, pour laquelle les particules et le fluide ont le même indice optique. Lors des expériences, la température sera contrôlée à l'aide d'un bain cryothermostaté alimentant un circuit d'eau fermé qui entoure les dispositifs expérimentaux, que je présenterai Section 2.5.

Le protocole d'ajustement de la densité et de l'iso-indice optique est le suivant : à partir de la recette de Krishnan, six mixtures ont été réalisées, en augmentant graduellement la proportion massique de Chlorure de Zinc, voir Figure 2.4 (a). Les vitesses de sédimentation des particules de PMMA dans ces mixtures sont ensuite mesurées à partir de la vitesse des fronts de sédimentation pendant 5h30. La proportion de  $\text{ZnCl}_2$  pour obtenir l'iso-densité est obtenue par interpolation, en choisissant celle pour laquelle la vitesse de sédimentation des particules est nulle, voir Figure 2.4 (b). Pour cette nouvelle composition, la température optimale d'iso-indice optique était de  $51^\circ\text{C}$ . Afin de baisser la température d'iso-indice optique, j'ai augmenté légèrement la proportion d'eau dans la mixture, jusqu'à atteindre une température d'iso-indice optique à  $23 \pm 0.5^\circ\text{C}$ . A titre indicatif, en augmentant de  $\approx 3\%m$  l'eau dans la solution, la température d'iso-indice optique du fluide diminue de  $\approx 25^\circ\text{C}$ . La composition de la mixture finale est la suivante :

Triton X-100 (%m)	$\text{ZnCl}_2$ (%m)	Eau (%m)
73.86	14.24	11.90

Cette mixture finale est ajustée en densité et en indice optique proche de la température ambiante ( $T \approx 23^\circ\text{C}$ ). Cela étant, pour chaque préparation, la température assurant l'iso-indice optimum peut légèrement varier. Il faut donc, comme on le verra dans la suite, déterminer cette température pour chaque nouvelle préparation.

La préparation de la mixture est délicate, et il est important de suivre le protocole suivant :

1. Dissolution du Chlorure de Zinc dans l'eau. Comme la réaction est fortement exothermique, il faut attendre que la solution refroidisse, puis rajouter la quantité d'eau

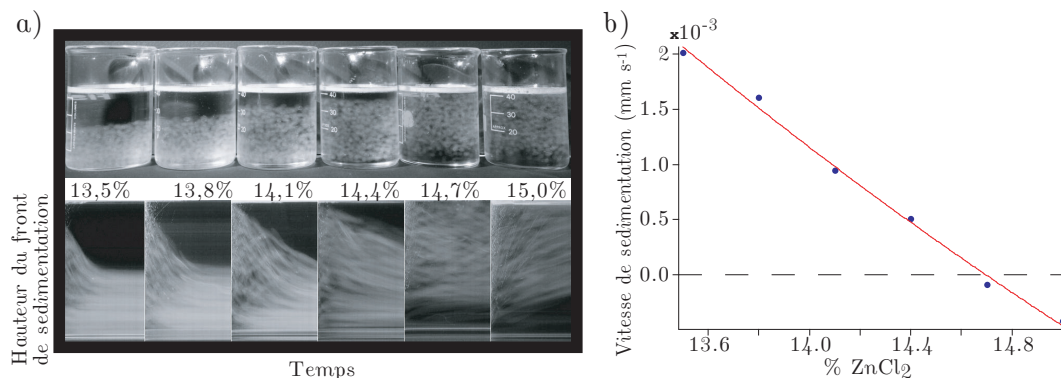


FIGURE 2.4 – a) *Haut* : Sédimentation des particules de PMMA dans des mixtures dont la teneur en Chlorure de Zinc est graduellement augmentée. *Bas* : Spatio-temporels correspondants montrant la position du front de sédimentation en fonction du temps : à gauche (faible %m de ZnCl<sub>2</sub>), les particules sédimentent, à droite (fort %m de ZnCl<sub>2</sub>) les particules crèment. b) La vitesse de sédimentation des particules décroît lorsque la proportion de Chlorure de Zinc est augmentée. La fraction massique de ZnCl<sub>2</sub> pour ajuster l'iso-densité est obtenue par interpolation, pour avoir une vitesse de sédimentation des particules nulle.

éventuellement évaporée.

- Ajout de  $\approx 0.5$  %m d'acide chlorhydrique (HCl) pour faciliter la dissolution du Chlorure de Zinc dans l'eau. Cela permet d'éviter la formation de précipité d'hypochlorite de zinc, améliorant considérablement la transparence optique de la solution [56].
- Verser progressivement le Triton X-100, tout en mélangeant lentement (avec une spatule). Il faut éviter que le Triton ne forme des 'clusters' gélifiés qui ne se mélangent pas avec la mixture.
- Passer à la pompe à vide pour évacuer les éventuelles bulles d'air.

#### Remarques :

- Le Chlorure de Zinc est très hygroscopique :
  - ★ il faut le manipuler avec des lunettes et des gants car son contact irrite fortement les mains et les yeux ;
  - ★ pour l'empêcher d'absorber l'humidité de l'air ambiant, il doit être manipulé rapidement ;
- Pour éviter d'emprisonner des bulles d'air, il faut déposer le Triton en le faisant glisser le long des parois du bécher ;
- Pour éviter que la mixture ne devienne une émulsion très épaisse, il ne faut pas agiter trop vigoureusement lors de l'ajout du Triton ;
- L'homogénéisation de la mixture peut être facilitée en la chauffant légèrement pour faire chuter sa viscosité ;
- La préparation finale peut être stockée dans un contenant hermétiquement fermé pendant plusieurs semaines et conserver son indice optique. A l'air libre, la solution vieillit, l'eau s'évapore progressivement et l'indice de réfraction optique est altéré.

Les proportions des composants du fluide pouvant légèrement varier (imprécision de mesure) d'une préparation à l'autre, la valeur optimum de température pour ajuster l'iso-indice optique est déterminée à chaque nouvelle préparation de fluide. Le protocole pour réaliser cette mesure est le suivant : une nappe laser horizontale est projetée au travers d'un échantillon de suspension agité par un barreau magnétique, voir Figure 2.5 (a). La déflexion de



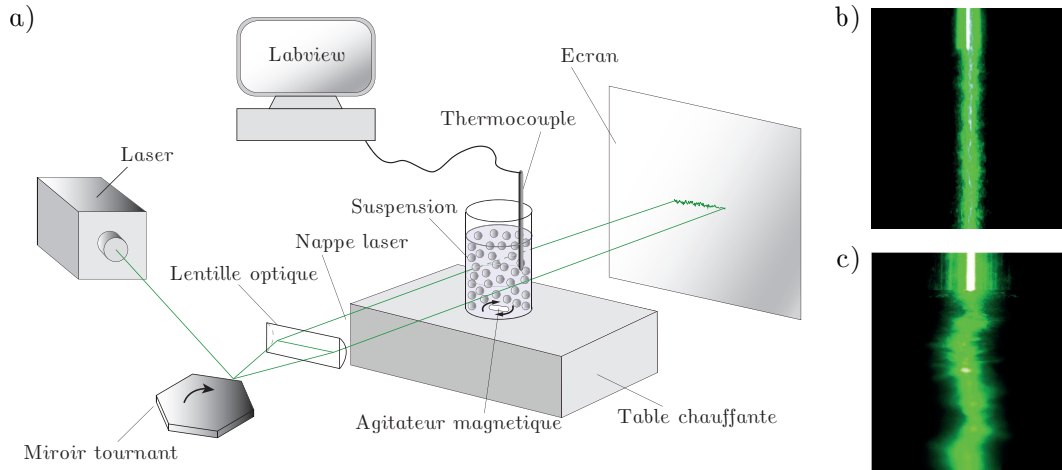


FIGURE 2.5 – a) Schéma du dispositif expérimental pour déterminer la température d'iso-indice optique. Une nappe laser est perturbée par son passage au travers de la suspension, et sa projection sur un écran placé en aval est observée : b) Bon iso-indice optique : faible déflexion de la nappe. c) Mauvais iso-indice optique : forte déflexion de la nappe.

la nappe laser par son passage au travers des multiples interfaces solide/liquide de la suspension est observée sur un écran vertical. Une rampe de température est appliquée à l'aide d'une table chauffante, suffisamment lentement pour que la température de la suspension ait le temps de s'homogénéiser dans le bécher. À la température optimale, la déflexion de la nappe laser est minimisée, voir Figure 2.5 (b). Typiquement, on observe que si la température de la suspension s'écarte de  $1^\circ\text{C}$  de la température optimum, alors la qualité de la transparence de la suspension est significativement dégradée. Cela indique que, pour assurer une bonne transparence de la suspension, l'indice optique doit être ajusté (cf. Figure 2.3) à la quatrième décimale !

### 2.1.2.2 Propriétés rhéologiques du fluide

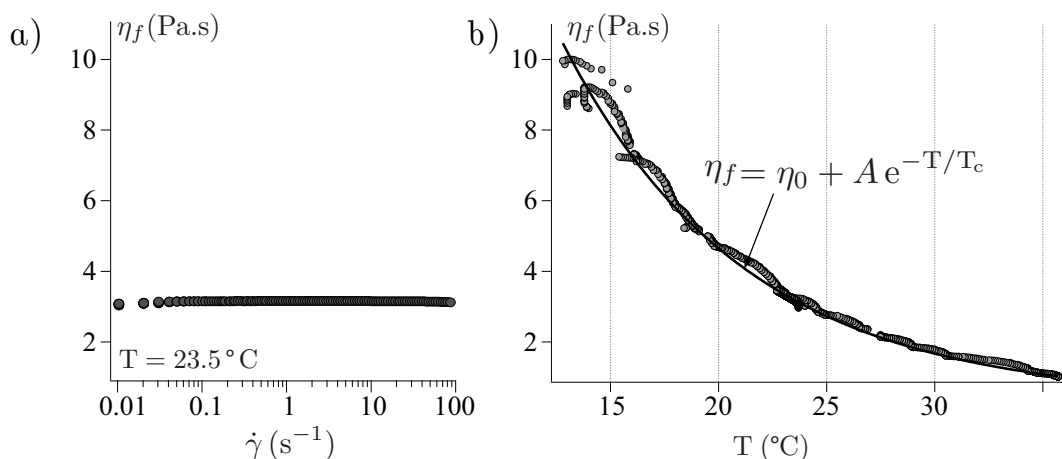


FIGURE 2.6 – Viscosité dynamique  $\eta_f$  du fluide en fonction a) du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , b) de la température.

Les propriétés rhéologiques de la mixture préparée en suivant le protocole ci-dessus sont caractérisées à l'aide d'un rhéomètre cône-plan (Anton Paar MCR 501). Comme illustré sur la Figure 2.6 (a), l'indépendance de la viscosité par rapport au taux de cisaillement indique que la mixture est un fluide Newtonien. La décroissance de la viscosité avec la température (cf. Figure 2.6 (b)) suit une loi exponentielle :

$$\eta(T) = \eta_0 + Ae^{-T/T_c}, \quad (2.1)$$

avec  $\eta_0 = 0.369$  Pa.s,  $A = 46.3$  Pa.s,  $T_c = 8.40$  °C, et T exprimé en degrés Celsius. J'ai également vérifié que les propriétés rhéologiques ne varient pas sur le temps caractéristique d'une expérience ( $\approx 1$  h). La viscosité du fluide à température ambiante ( $T \approx 23$  °C) étant  $\approx 3.2$  Pa.s, et les taux de cisaillement typiques des expériences réalisées dans cette thèse étant de  $\dot{\gamma} \approx 0.1$  s<sup>-1</sup>, le nombre de Reynolds typique est de l'ordre de  $10^{-4}$ . Les écoulements sont donc bien régis par les équations de Stokes.

Nous disposons d'un fluide Newtonien et visqueux qui assure des écoulements à bas nombre de Reynolds. En jouant sur la composition du fluide, nous avons pu ajuster l'indice de réfraction optique et la densité du fluide et des particules. Le point clé pour assurer une transparence optimum de la suspension est de contrôler la température des dispositifs expérimentaux. Bien que chronophage, le travail réalisé pour établir ces protocoles de préparation du fluide s'est avéré très important pour la qualité des résultats expérimentaux obtenus dans la suite.

## 2.2 Dispositif optique et visualisation

La qualité des images dépend de la bonne transparence de la suspension. Elle est aussi fortement influencée par le dispositif optique et la chaîne d'acquisition des images. Dans l'ensemble des dispositifs que je présenterai par la suite, la suspension est éclairée dans le plan de cisaillement à l'aide d'une nappe laser. La finesse de la nappe laser est un point crucial pour obtenir des images avec un bon piqué. Je décris dans la suite comment la nappe laser a été préparée, puis je présenterai le dispositif d'acquisition d'images.

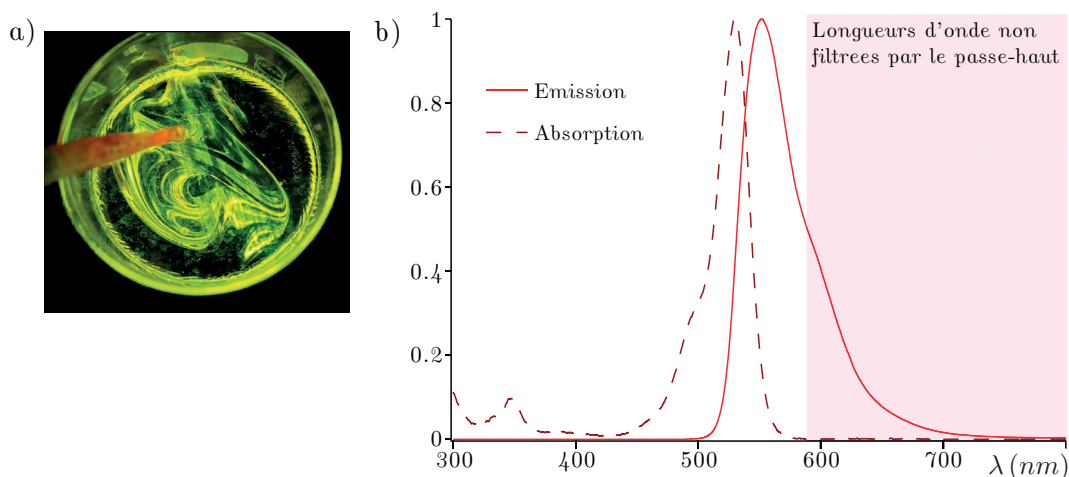


FIGURE 2.7 – a) Visualisation d'une goutte de rhodamine 6G injectée dans le fluide suspendu et illuminée par une nappe laser. b) Spectre d'émission et d'absorption de la rhodamine 6G. Un filtre passe-haut est employé pour supprimer les réflexions directes de la lumière de la diode laser.

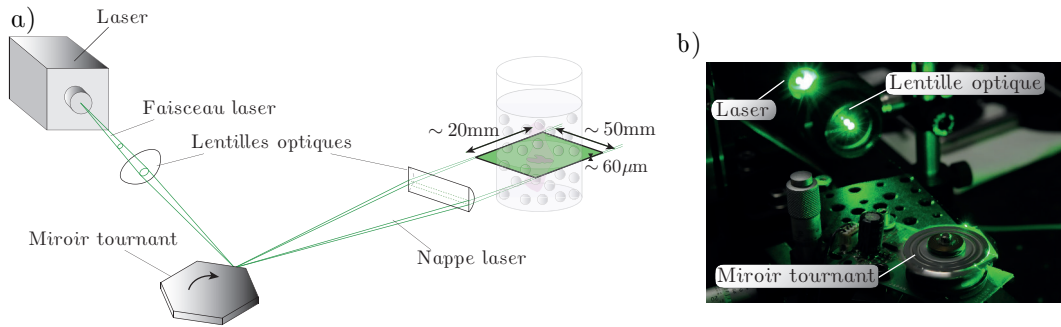


FIGURE 2.8 – a) Schéma du dispositif optique pour obtenir la nappe laser. Un faisceau laser focalisé impacte un miroir tournant, puis une lentille semi-cylindrique affine la nappe obtenue. b) Photo du dispositif pour obtenir la nappe laser, en fonctionnement.

### 2.2.1 Nappe laser

Toutes les visualisations sont basées sur une technique classique de fluorescence. Suivant le type d'expérience, soit des traceurs fluorescents, soit un colorant fluorescent sont injectés dans la suspension et éclairés par une nappe laser, Figure 2.7 (a). Lorsque ces fluorochromes sont éclairés à la bonne longueur d'onde, ils ré-émettent par fluorescence de la lumière à une longueur d'onde différente, comme illustré Figure 2.7 (b). Comme source lumineuse, nous avons utilisé une diode laser (ND : Yag) de longueur d'onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$  et de puissance 2W (classe 4). Comme illustré Figure 2.8 (a), le faisceau généré par la diode laser traverse d'abord une lentille sphérique qui le focalise sur un miroir tournant ( $\approx 10000 \text{ tr/min}$ ). Pour information, ce type de miroir peut être démonté d'une imprimante laser hors service. Le faisceau balaye alors l'espace environnant à très haute fréquence, générant un cône laser 2D d'intensité homogène. Pour affiner l'épaisseur de la nappe laser ainsi générée, une lentille plano-convexe est placée en aval, à distance focale de la zone de travail. *In fine*, l'épaisseur caractéristique de la nappe laser dans la zone de travail est d'environ  $60 \mu\text{m}$ .

### 2.2.2 Acquisition des images

Afin d'améliorer la qualité des images, un certain nombre d'éléments que je présente dans la suite ont été introduits dans le dispositif expérimental.

La suspension est observée par le dessus, or, lorsqu'on cisaille une suspension de particules se développent des contraintes normales : les particules ont tendance à déformer la surface libre de la suspension. Pour s'affranchir de ce problème, qui bien évidemment détériore les visualisations, nous avons placé un 'hublot' en PMMA sur la surface libre de la suspension au dessus de la zone de travail. Un petit trou dans le hublot ( $0.7 \text{ mm}$  de diamètre) permet, comme on le verra plus tard, de passer une seringue qui servira à injecter une goutte de colorant au cœur de la suspension (voir §2.6.1).

Après le hublot, un filtre passe-haut est utilisé afin de supprimer les réflexions directes de la lumière émise par la diode laser. La lumière émise par la diode laser n'étant pas parfaitement monochromatique, j'ai choisi d'utiliser un filtre passe-haut avec une longueur d'onde de coupure relativement élevée à  $590 \text{ nm}$ . Ce filtre permet de ne conserver que la lumière ré-émise par fluorescence, comme illustré Figure 2.7 (a) ; il supprime donc une grande quantité de bruit contenu dans les images.

L'acquisition des images est réalisée à l'aide d'un objectif Sigma APO-Macro-180 mm-F3.5-DG de grossissement 1:1, permettant d'avoir une distance de travail  $\sim 50 \text{ cm}$ . L'utilisation de l'objectif avec une ouverture  $D$  maximale ( $f/2.8$ ) permet d'avoir une profondeur de champ minimale et une plus grande quantité de lumière reçue, mais elle entraîne une diminution du pouvoir de résolution  $\theta$  (en radians) selon  $\theta = 1.22\lambda/D$ , menant à l'apparition

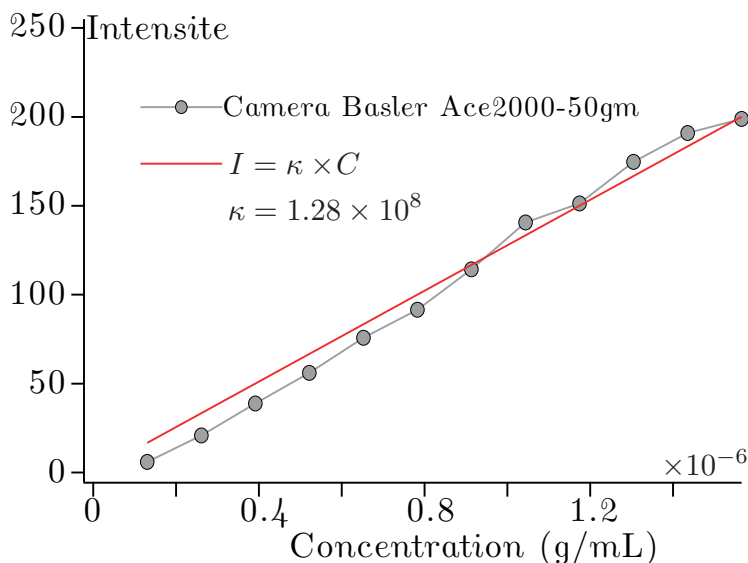


FIGURE 2.9 – Calibration intensité de la caméra (niveau de gris) versus concentration en rhodamine.

d'aberrations optiques. J'ai donc décidé de réaliser les expériences en fermant légèrement le diaphragme (typiquement  $f/11$ ), pour avoir le meilleur compromis entre la quantité de lumière reçue, le pouvoir de résolution, et la profondeur de champ. Les images sont enregistrées sous le logiciel StreamPix, en utilisant une caméra Basler Ace2000-50gm, équipée d'un capteur CMOS  $11.26 \times 5.98 \text{ mm}^2$  générant des images avec une définition de  $2048 \times 1080$  pixels<sup>2</sup> sur 8 ou 12 bits. La taille de ses pixels est  $5.5 \times 5.5 \mu\text{m}^2$ , et la résolution spatiale typique des images obtenues est de  $7 \mu\text{m}/\text{pixel}$ . Le temps de pose est typiquement réglé pour être largement inférieur au temps caractéristique associé aux vitesses de déplacements des particules, afin qu'elles n'apparaissent pas floues sur les images. J'ai calibré la réponse intensité de la caméra/concentration en rhodamine (voir Figure 2.9) et vérifié qu'elle est bien linéaire, en prenant des photos d'un fluide contenant des concentrations graduellement augmentées de rhodamine 6G. Le fluide est homogénéisé avant chaque acquisition d'image, et tous les paramètres d'acquisitions (temps de pose, ouverture, ISO) restent inchangés entre chaque acquisition. La linéarité de la réponse en intensité de la caméra permet de relier l'intensité des pixels sur les images au niveau de concentration en rhodamine.

Une remarque importante par rapport à ce dispositif est que l'on a choisi d'utiliser une source lumineuse de grande puissance (2W). On a donc pu se permettre de "gaspiller" une grande quantité de lumière, cela au profit de la qualité de la mesure :

- l'utilisation d'un miroir tournant crée un cône fortement divergent dont on ne récupère qu'une faible portion, mais assure une nappe laser d'intensité homogène.
- Le filtre passe-haut coupe une quantité importante de lumière, et ne laisse passer que l'information intéressante : la lumière ré-émise par fluorescence.
- Travailler avec une faible ouverture permet d'augmenter la résolution optique.

## 2.3 Le fluorochrome : Rhodamine 6G

### 2.3.1 Absorption

Le fluorochrome employé dans les expériences est de la rhodamine 6G pure (Acros Organics), de formule brute  $\text{C}_{28}\text{H}_{31}\text{ClN}_2\text{O}_3$ . La quantité de lumière ré-émise par fluorescence

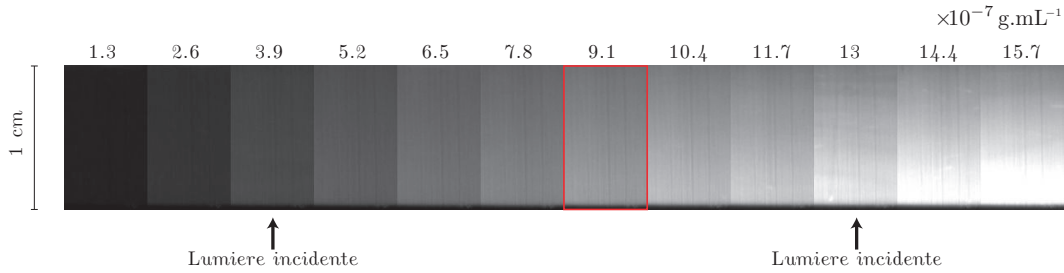


FIGURE 2.10 – Mesure d’absorption pour différents niveaux de concentration en rhodamine 6G. En dessous de  $9.1 \times 10^{-7} \text{g.mL}^{-1}$ , l’atténuation d’intensité est  $< 5\%$  sur  $\sim 1 \text{cm}$ .

est directement proportionnelle à l’intensité de lumière reçue par les molécules, ainsi qu’à la concentration locale en colorant. Cela étant, l’intensité de la lumière incidente est atténuée par absorption lors de son passage au travers de la mixture lorsque celle-ci est ‘dopée’ en rhodamine. Cette atténuation suit une décroissance exponentielle selon la loi de Beer-Lambert, fonction de la distance parcourue dans le milieu considéré et de la concentration en rhodamine. J’ai expérimentalement mesuré la concentration en rhodamine pour laquelle l’atténuation de l’intensité est inférieure à  $5\%$  sur une distance de  $\sim 1 \text{cm}$ , typique de l’épaisseur de suspension traversée dans les dispositifs expérimentaux. Le protocole est le suivant : du fluide pur est illuminé par la nappe laser, tandis que des clichés sont pris pour un jeu fixe de paramètres d’acquisition (temps de pose, ouverture, ISO). La concentration en rhodamine est graduellement augmentée dans le fluide, et l’homogénéisation est faite avant chaque acquisition. J’ai ensuite mesuré l’intensité de la lumière ré-émise par fluorescence afin de déterminer le seuil de concentration au-delà duquel l’absorption devient supérieure à  $5\%$ , c-à-d le moment où l’intensité est atténuée de plus de  $5\%$  sur  $\sim 1 \text{cm}$ . La valeur de la concentration limite trouvée est  $C_{rhoda}^{max} = 9.1 \times 10^{-7} \text{g.mL}^{-1}$ , comme illustré Figure 2.10.

Toutes les expériences présentées dans cette thèse sont réalisées à des concentrations  $C_{rhoda} \leq C_{rhoda}^{max}$ . Comme la nappe laser est homogène et que la caméra a une réponse linéaire en intensité (voir §2.2.2), on a une relation linéaire entre la concentration en rhodamine et le niveau d’intensité des pixels :

$$C_{rhoda} \propto I_{pixel}. \quad (2.2)$$

### 2.3.2 Mesure du coefficient de diffusion moléculaire $D_0$

Comme on le verra dans la suite, pour estimer par exemple des temps de mélange ou de manière plus générale, l’importance relative de l’advection par rapport à la diffusion moléculaire, il nous faut déterminer le coefficient de diffusion moléculaire  $D_0$  de la rhodamine dans le fluide au repos.

Pour mesurer  $D_0$ , on s’est inspiré d’une méthode couramment utilisée en biologie : la méthode FRAP (*Fluorescence Recovery After Photobleaching*) [59]. L’idée est d’impacter le fluide dopé en rhodamine avec un laser de forte intensité afin de localement inhiber la fluorescence. Ce phénomène de perte de fluorescence appelé ‘*photobleaching*’ est irréversible. La zone ‘bleachée’ recouvre progressivement sa fluorescence par diffusion des molécules fluorescentes alentours. Notre fluide étant très visqueux, on s’attend à un coefficient moléculaire très faible et donc des temps de mesure très longs. Ainsi pour éviter les effets de convection naturelle, nous avons suivi le protocole suivant : du fluide dopé en rhodamine est d’abord introduit entre 2 lames de microscope séparées à l’aide de deux entretoises de  $150 \mu\text{m}$  d’épaisseur, cf. Figure 2.11 (a). Une nappe laser de forte intensité (2W) perpendiculaire aux lames impacte ensuite le fluide pendant 1 min 30, inhibant par photobleaching la fluorescence de manière irréversible le long d’une ligne. Le profil d’intensité moyenné le long de la ligne ‘bleachée’ apparaît comme un profil d’intensité gaussien (cf. Figure 2.11 (b)) qui s’étale au cours du temps (cf. Figure 2.11 (c)) avec une variance  $\chi^2$  qui croit

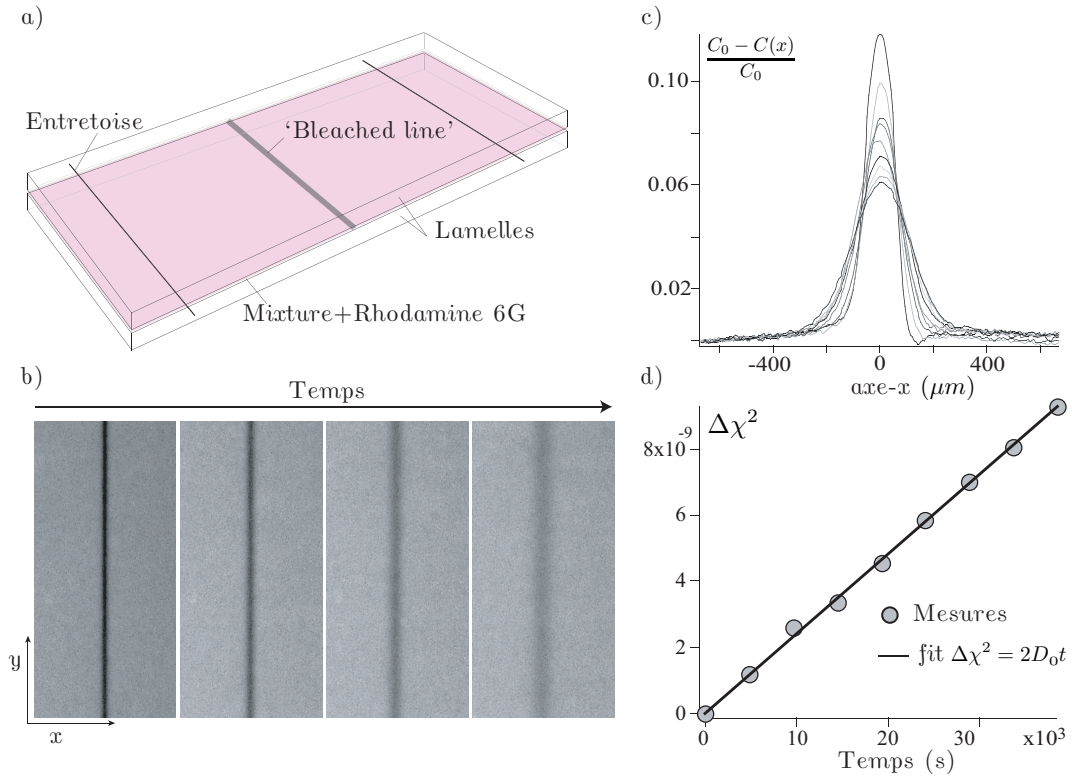


FIGURE 2.11 – a) Schéma du dispositif pour mesurer la diffusion moléculaire  $D_0$  de la rhodamine 6G dans le fluide au repos. b) Evolution à  $t = 0, 4800, 21600$  et  $64800$  s de la ligne photobleachée. c) Evolution du profil de concentration. d) Evolution de la variance relative  $\chi^2(t) - \chi^2(0)$  en fonction du temps. Un fit linéaire en  $\Delta\chi^2 = 2D_0t$  résulte en  $D_0 = 1.44 \pm 0.2 \times 10^{-13} \text{m}^2\text{s}^{-1}$ .

linéairement avec le temps. L'évolution de la variance est mesurée pendant 18h et le coefficient de diffusion de la rhodamine est donné par la demi-pente de la variance relative selon  $D_0 = [\chi^2(t) - \chi^2(0)]/2t \simeq 1.44 \pm 0.2 \times 10^{-13} \text{m}^2\text{s}^{-1}$ , cf. Figure 2.11 (d). Le coefficient de diffusion obtenu est consistant avec celui mesuré par Culbertson *et al.* [60] dans de l'eau :  $D_0 = 4.14 \cdot 10^{-10} \text{m}^2\text{s}^{-1}$ , étant donné que la viscosité du fluide suspendant est ici  $\approx 3000$  fois celle de l'eau et que le coefficient de diffusion moléculaire évolue comme  $D_0 \propto 1/\eta_f$ , selon la relation de Stokes–Einstein–Sutherland.

## 2.4 Mesure des champs de vitesses par PIV

La qualité de l'iso-indice optique et du dispositif de visualisation nous a permis d'effectuer des mesures initialement inenvisagées : celles du champ de vitesses du fluide interstitiel dans le cœur de la suspension. Cette mesure nous a permis de complètement caractériser la cinématique de déformation du système. Comme on le verra plus loin, cette information est cruciale pour comprendre les processus de mélange ayant lieu dans les suspensions de particules cisailées.

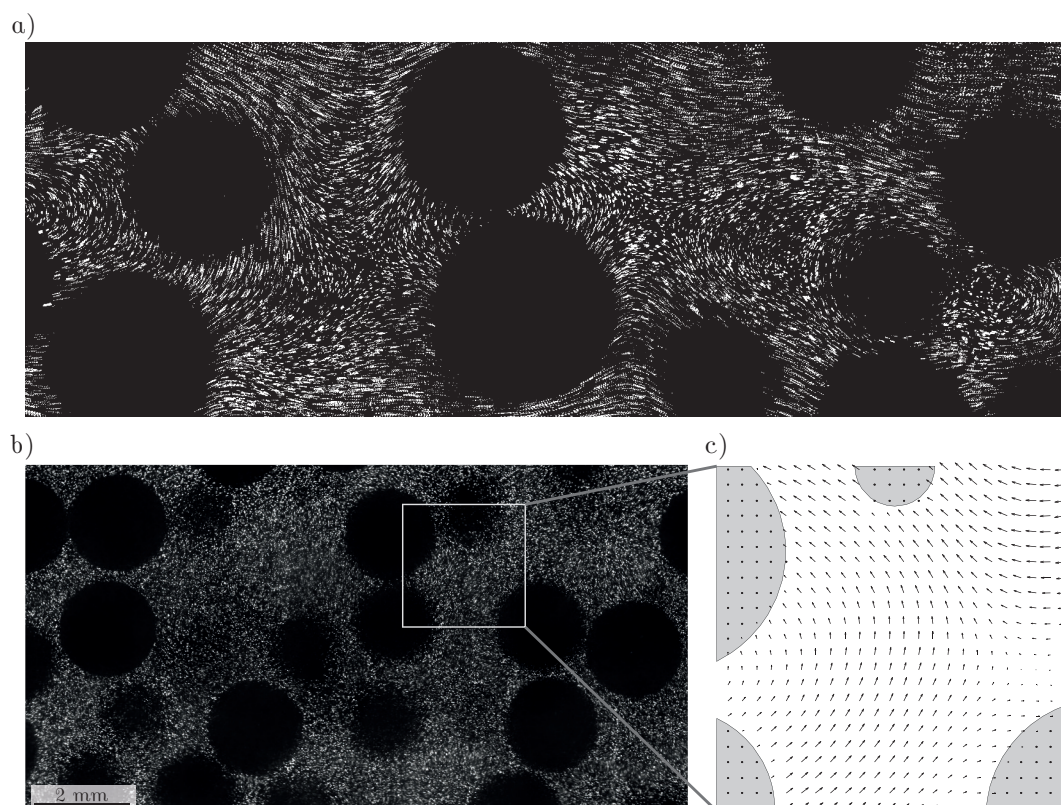


FIGURE 2.12 – Cliché d’une suspension cisailée illuminée par une nappe laser. La suspension estensemencée de petits traceurs fluorescents passifs qui permettent de visualiser l’écoulement du fluide interstitiel. Les traceurs apparaissent comme autant de points blancs lumineux, alors que le fluide suspendant et les particules apparaissent en noir. a) Lignes de courant du fluide interstitiel ( $\phi = 35\%$ ) obtenues en utilisant un long temps d’exposition. b) Image de la suspension avec un temps d’exposition court c) Zoom sur le champ de vitesses correspondant obtenu par PIV ; la vitesse n’est pas calculée dans les zones occupées par les particules.

Le champ de vitesses de la phase fluide est mesuré dans le plan de cisaillement ( $x-y$ ) à l’aide d’une technique PIV (Particle Image Velocimetry). Le principe est d’ensemencer le fluide avec de petits traceurs passifs fluorescents (ici des particules de PMMA-B de  $3.23\ \mu\text{m}$  de diamètre recouvertes de rhodamine fournies par MF-Rhodamine), et de suivre leur mouvement dans l’écoulement, cf. Figure 2.12 ; ces traceurs ont une inertie négligeable, ne perturbent pas l’écoulement, et leur fraction volumique est négligeable  $\sim 10^{-5} \ll \phi$ . L’approche est Eulérienne, elle consiste à diviser chaque image selon une grille de sous-images, et d’étudier la corrélation de doublets de la même sous-image pour deux images successives séparées d’un laps de temps  $dt$ . La fonction d’inter-corrélation entre ces 2 sous-images est calculée pour chercher la ressemblance entre les motifs, voir Figure 2.13. La position du pic d’inter-corrélation donne le déplacement du motif entre les 2 instants successifs. Le vecteur vitesse associé est déterminé en divisant le déplacement mesuré par le laps de temps  $dt$ . Ce traitement appliqué à l’ensemble des sous-images donne une mesure du champ de vitesses 2D. On peut améliorer la résolution du champ de vitesses en faisant se chevaucher partiellement les sous-images et en diminuant leur taille. Pour étudier l’influence de la taille des sous-images de PIV sur la statistique des champs de vitesses, j’ai fait varier la taille des sous-images ( $16 \times 16$ ,  $32 \times 32$ ,  $64 \times 64$  pixels<sup>2</sup>). Pour la plus petite taille, afin d’éviter que les traceurs ne sortent de la sous-image entre chaque instant, j’ai modifié le code pour effectuer une PIV

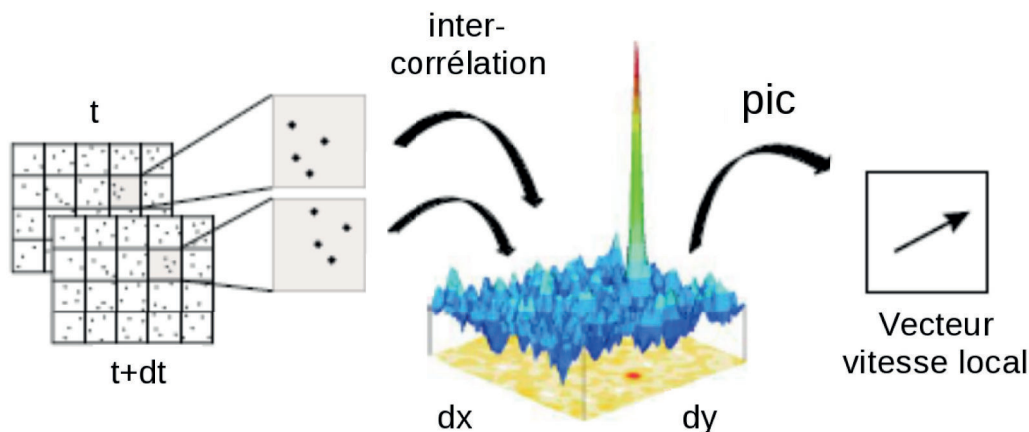


FIGURE 2.13 – Schéma du traitement par inter-corrélation entre 2 sous-images successives. Le vecteur vitesse locale instantanée est calculé à partir de la position du pic d’inter-corrélation et du laps de temps  $dt$ . Image extraite du site de LaVision.

“Smart”, qui consiste à décaler la seconde sous-image du déplacement moyen préalablement mesuré à l’aide d’une PIV réalisée avec une taille de sous-image plus importante. Il est important de noter que varier la taille des sous-images n’a ici pas d’impact significatif ( $\leq 5\%$ ) sur les statistiques du champ de vitesses.

Le code de PIV employé a été adapté d’un code Matlab développé par Meunier & Leweke [61]. La fréquence d’acquisition typique des images est de 10Hz, et les sous-images sont espacées entre elles de typiquement  $d/20$  (avec  $d$  le diamètre des particules). Une difficulté pour effectuer cette PIV est la présence des particules. Pour détecter si une sous-image est localisée sur une particule, j’ai utilisé 2 filtres : *i*) le premier sur la valeur du maximum d’inter-corrélation (l’absence de traceur donne lieu à un pic d’inter-corrélation faible), *ii*) le second sur l’écart-type des niveaux d’intensité au sein de la sous-image (l’absence de traceur donne lieu à un faible écart-type). Dans la situation où une sous-image est localisée sur une particule, le vecteur vitesse dans la sous-image n’est pas calculé, cf. Figure 2.12 (c).

## 2.5 Dispositifs expérimentaux

Dans cette section, je présente les deux dispositifs expérimentaux développés au cours de cette thèse. Le premier est une cellule de Couette cylindrique, cf. Figure 2.14 (a). Son atout principal est de permettre un cisaillement continu, sans limite de déformation. En revanche, la courbure induit une légère non linéarité du profil de vitesse qui peut à forte fraction volumique générer une migration non-négligeable des particules. Le second dispositif est une cellule originale de cisaillement plan-plan, cf. Figure 2.14 (b). L’avantage de ce dispositif est que le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est constant, le ‘gap’ entre les parois est plus grand, et surtout l’écoulement présente une ligne neutre au centre du canal où la vitesse est en moyenne nulle. L’inconvénient de ce dispositif est que, pour des problèmes techniques que l’on discutera par la suite, la déformation maximum est limitée à  $\gamma \sim 20$ . Ce dispositif est donc plutôt adapté à des configurations d’écoulements périodiques.



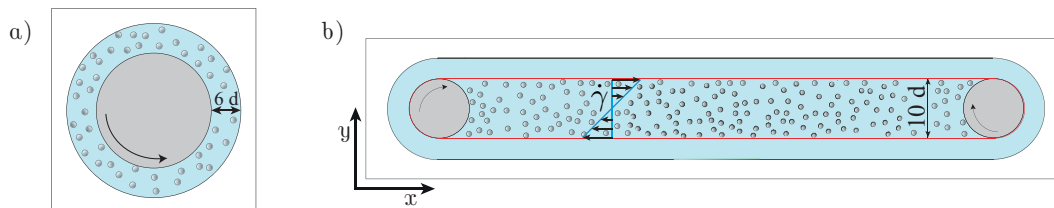


FIGURE 2.14 – Schéma : a) de la cellule de Couette cylindrique, b) Cellule de cisaillement plan-plan.

### 2.5.1 Cellule de Couette cylindrique

Le dispositif est schématisé Figure 2.15 (a). Cette cellule de Couette, inspirée du dispositif expérimental utilisé par Metzger *et al.* [19], est composée de deux cylindres concentriques. Le cylindre interne qui a un rayon de 5 cm et une hauteur de 12 cm est entraîné en rotation par une table de rotation (M-0.61, PI piezo-nano positioning) de grande précision angulaire ( $3 \times 10^{-5}$  rad). Le cylindre externe fixe est usiné dans un seul bloc de PMMA, et le gap est de 12 mm (6 diamètres de particules). L'ensemble de la cellule de Couette est entouré d'un circuit d'eau alimenté par un bain cryothermostaté (Fisher Bioblock Scientific) permettant d'ajuster finement ( $\pm 0.5$  °C) la température du dispositif. Le cliché en Figure 2.15 (b) montre l'ensemble du dispositif : nappe laser, appareil photo et cellule de Couette cylindrique. L'entrefer est rempli de suspension, et la rotation du cylindre interne entraîne l'établissement d'un écoulement de cisaillement linéaire. La faible valeur de l'entrefer devant le rayon des cylindres place ce dispositif parmi les cellules de Couette dites "narrow-gap", où le taux de cisaillement est quasi-constant dans le gap.

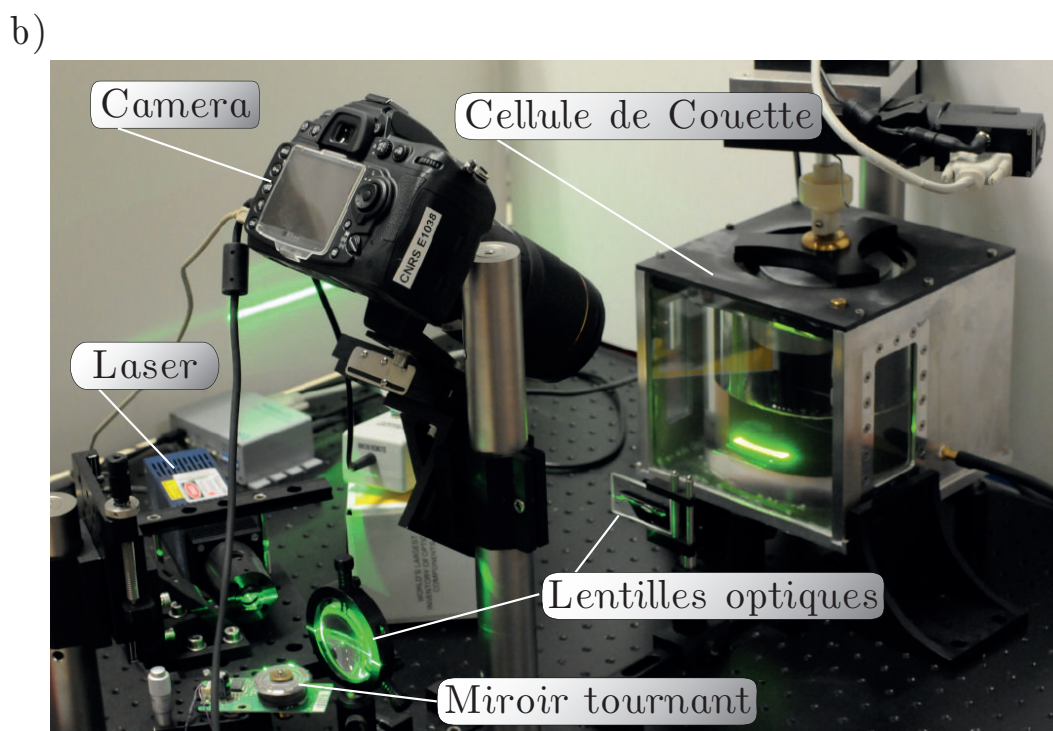
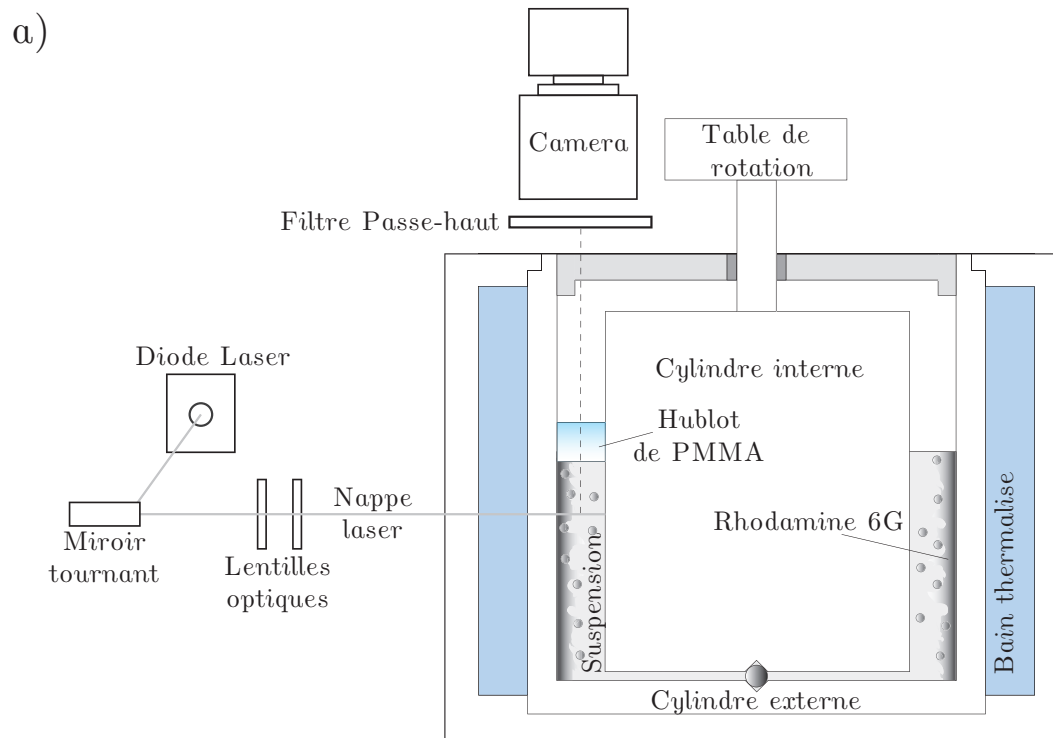


FIGURE 2.15 – a) Schéma de la cellule de Couette cylindrique. b) Photo du montage expérimental.

### 2.5.2 Cellule de cisaillement plan-plan

La deuxième cellule de cisaillement est présentée schématiquement en Figure 2.16 (a). Le principe est qu'une courroie transparente est montée en tension sur deux cylindres verticaux. En entraînant un des deux cylindres à l'aide d'une table de rotation (la même que celle utilisée pour la cellule de Couette cylindrique), le mouvement de la courroie génère un écoulement de cisaillement linéaire à l'intérieur de la courroie.

Cette cellule est en fait une version améliorée de la version utilisée par Metzger & Butler qui avait pour but d'étudier l'évolution d'un amas de particules soumis à un cisaillement périodique [62]. Cette fois, l'objectif est d'étudier le mélange d'un colorant dans une suspension homogène ; pour cette nouvelle version de la cellule, il fallait éviter que les particules ne se coincent entre la courroie et les cylindres. Nous avons donc assemblé une nouvelle cellule avec une courroie tendue entre deux cylindres dans la partie haute, et entre deux roulements à billes dans la partie basse de la cellule ; la cellule n'est remplie que jusqu'au bas des cylindres : la suspension est donc libre de s'écouler en dessous des cylindres.

Pour les expériences réalisées dans cette thèse qui nécessitent un ajustement optique précis, j'ai aussi équipé le dispositif d'un circuit d'eau alimenté par un bain cryothermostaté (Fisher Bioblock Scientific) permettant de contrôler ( $\pm 0.5^\circ\text{C}$ ) sa température. Le cliché en Figure 2.16 (b) présente l'ensemble du dispositif expérimental (cellule de cisaillement + dispositif optique).

Un point délicat est la fabrication de la courroie transparente. Celle-ci a été réalisée à partir d'une bande de Mylar (GoodFellow) d'épaisseur 0.25 mm, de longueur 944 mm et de largeur 88 mm. La difficulté est d'en joindre les deux extrémités afin d'en faire une courroie. Pour réaliser cette jonction, j'ai testé diverses techniques : colle, scotch, couture, agrafes... pour finalement opter pour une soudure au fer à souder. Une fine bande de Mylar qui est déposée sur la zone où les deux extrémités sont accolées bord à bord, sert d'apport de matière supplémentaire pour la soudure. La section est ensuite poncée afin d'éliminer toutes éventuelles variations d'épaisseur. Cela étant la jonction reste fragile, il faut donc éviter qu'elle ne passe derrière les cylindres. Cela limite la déformation maximum que l'on peut imposer à  $\gamma = 20$ .

Lors du processus de fabrication de la courroie, il faut éviter de faire des rayures. Celles-ci génèrent des ombres dans leur sillage lorsque la nappe laser la traverse, qui viennent détériorer les images. Pour minimiser ces rayures, un soin particulier est apporté lors des manipulations de la bande de Mylar. La découpe est réalisée sur un tissu propre, pour éviter de rayer le plastique au contact direct de la table. Pour protéger davantage la zone au travers de laquelle se fait la visualisation lors de la découpe, elle est temporairement recouverte des deux cotés d'un adhésif ne laissant pas de marques lorsqu'il est retiré (scotch noir 3M 6910).

## 2.6 Protocoles expérimentaux

Dans la suite, je présente en détails les protocoles expérimentaux pour les trois études réalisées au cours de cette thèse.

### 2.6.1 Expérience de Taylor dans une suspension de particules

Une expérience emblématique réalisée par Taylor en 1966 illustre la réversibilité des écoulements gouvernés par les équations de Stokes. Comme nous l'avons vu dans l'introduction, dans certaines conditions (grande déformation, forte fraction volumique), la présence de particules dans le fluide brise cette réversibilité. L'objectif de cette expérience est d'étudier l'impact de la présence de particules sur la dispersion d'une goutte de colorant dans une suspension cisailée de façon périodique.

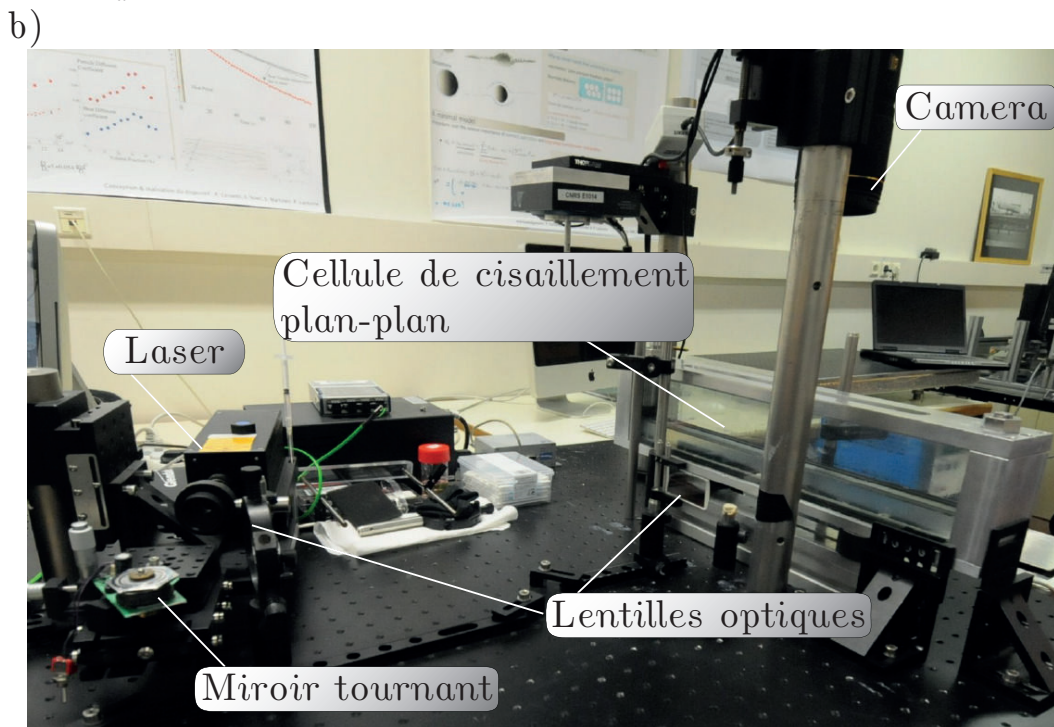
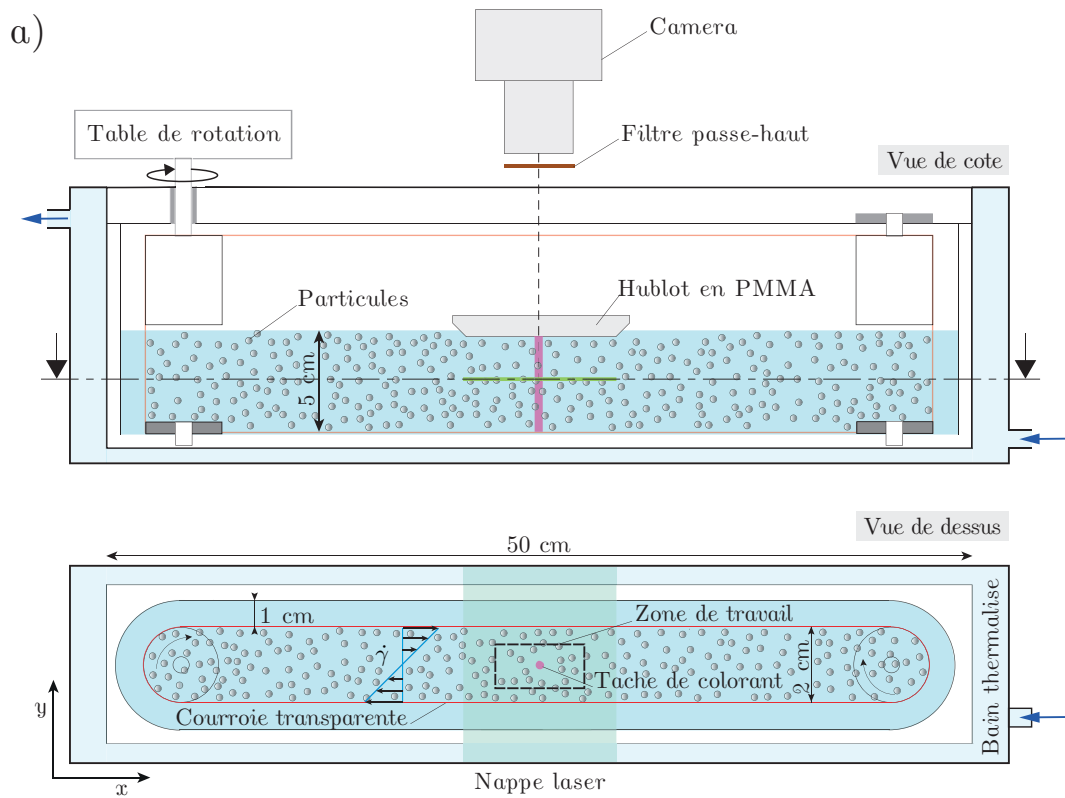


FIGURE 2.16 – a) Schéma de la cellule de cisaillement plan-plan. b) Photo du montage expérimental.

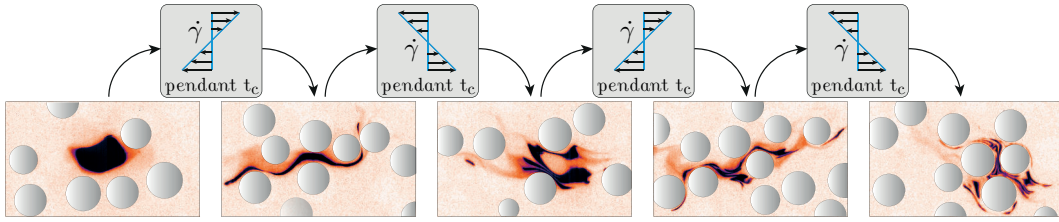


FIGURE 2.17 – Une goutte de rhodamine 6G (en noir) est injectée dans une suspension ( $\phi = 35\%$ ) cisailée périodiquement dans la cellule de cisaillement plan-plan.

J’ai réalisé ces expériences dans la cellule de cisaillement plan-plan, en injectant une goutte de colorant au niveau de la ligne neutre d’écoulement. Le protocole est le suivant :

1. La cellule est remplie d’une suspension de fraction volumique  $\phi = 35\%$  jusqu’à affleurer le bas des cylindres.
2. La suspension est ensuite thermalisée pendant  $\sim 30$  min à l’aide du bain thermostaté, pour ajuster au mieux l’indice optique du fluide (§2.1.2.1) à celui des particules et obtenir la meilleure transparence de la suspension possible.
3. Le hublot de PMMA (§2.2.2) est mis en place, la nappe laser (2 W) et la caméra sont ajustées.
4. Un point important est que pour une expérience réalisée à la déformation  $\gamma$ , la suspension est pré-cisailée à cette déformation pendant 40 cycles afin que la microstructure de la suspension s’auto-organise dans son état stationnaire [41].
5. Une goutte de forme cylindrique est injectée au cœur de la suspension à l’aide d’une aiguille glissée au travers du trou percé dans le hublot de PMMA. Pour minimiser la convection, le colorant est préalablement thermalisé à la même température que la suspension. Pour minimiser les effets d’absorption (§2.3.1), la goutte dopée en rhodamine est préparée à une concentration inférieure à  $C_{rhoda}^{max}$ .
6. Un cisaillement oscillant ( $\dot{\gamma} = 0.5 \text{ s}^{-1}$ ) est appliqué pendant  $\sim 40$  cycles, et une image de la goutte est prise à la fin de chaque cycle de cisaillement.

La quantité de rhodamine injectée à chaque expérience étant négligeable devant le volume de suspension, il suffit de cisailier largement la suspension à la fin d’une expérience pour mélanger complètement la rhodamine : une nouvelle expérience peut alors être réalisée en reprenant le protocole à partir de l’étape 4. Les résultats de ces expériences seront présentés dans le Chapitre 3.

### 2.6.2 Dispersion et mélange dans une suspension de particules cisailées : effet des parois

Comme nous l’avons présenté dans l’introduction, le moteur identifié de l’intensification des transferts dans les suspensions de particules est la diffusion translationnelle des particules induite par l’écoulement. Cependant, proche des parois, les effets de frustrations stériques atténuent voire éliminent complètement cette agitation translationnelle des particules. Pour décrire l’effet des parois, Wang *et al.* [54] ont proposé que dans une couche limite d’environ un diamètre de particule, le transport résulte uniquement de la diffusion moléculaire. Cela étant, Wang *et al.* avait seulement accès à une mesure “macroscopique” du coefficient effectif de diffusion au travers de la suspension. Grâce aux techniques de visualisation directe développées plus haut, notre objectif est de revisiter ce problème afin de mieux comprendre les mécanismes de transferts en proche paroi dans les suspensions de particules cisailées.

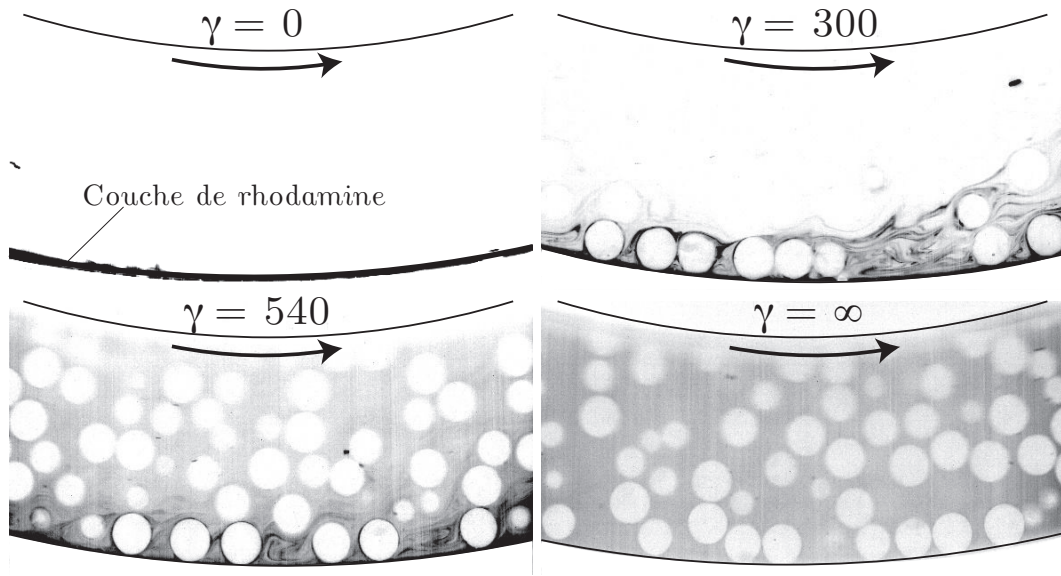


FIGURE 2.18 – Clichés successifs d’une suspension à  $\phi = 35\%$ . Une fine couche de rhodamine 6G (en noir) est appliquée initialement sur le cylindre externe d’une cellule de Couette cylindrique. Lorsque la suspension est continuellement cisailée, le colorant se répand dans l’entrefer entre les 2 cylindres, jusqu’à être dispersé de façon homogène. Les particules apparaissent ici comme des disques blancs.

Pour cela, j’ai réalisé des expériences dans la cellule de Couette cylindrique. Cette étude constitue le pendant de l’expérience de Metzger *et al.* [19], qui s’intéressait au transfert de chaleur d’une paroi (chauffée de manière pulsée) vers le bulk d’une suspension de particules cisailée. De façon analogue, j’ai étudié ici le transfert (de masse) d’une couche de colorant initialement déposée sur la paroi du cylindre externe de la cellule de Couette, en mesurant sa dispersion progressive dans le bulk de la suspension soumise à un écoulement. La Figure 2.18 illustre ce processus : une fine couche de fluide dopé en rhodamine (en noir) est initialement localisée sur le cylindre externe de la cellule de Couette. Cette couche, sous l’effet du cisaillement et de la présence des particules dans le fluide, envahit progressivement l’intégralité du gap entre les deux cylindres jusqu’à l’homogénéisation totale du système.

Le protocole expérimental est le suivant :

1. Le cylindre interne est thermalisé pendant  $\sim 30$  min à la température d’iso-indice optique (§2.1.2.1). Pour empêcher que le cylindre (en aluminium) ne s’oxyde au contact du fluide et ne libère des micro-bulles, il est recouvert d’un scotch noir mat. Ce scotch permet aussi de limiter les réflexions de la nappe laser sur le cylindre interne.
2. Une fine couche de fluide ‘dopé’ en rhodamine ( $C_{rhoda} \leq C_{rhoda}^{max}$ , §2.3.1) est déposée à l’aide d’un pinceau sur la paroi du cylindre externe fixe.
3. Le cylindre interne thermalisé est mis en place dans la cellule.
4. La suspension ( $\phi = 35\%$ ) est versée dans la cellule tout en perturbant le moins possible la couche de rhodamine déposée sur la paroi du cylindre externe. Cette opération est délicate mais réalisable étant donnée la grande viscosité de la suspension employée.
5. La suspension est thermalisée pendant  $\sim 30$  min à l’aide du bain thermostaté, pour ajuster très précisément l’indice optique du fluide (§2.1.2.1) et assurer la meilleure transparence de la suspension possible.
6. Le hublot de PMMA (§2.2.2) est mis en place sur la surface libre, la nappe laser (2 W) et la caméra sont ajustées.

7. Un cisaillement continu ( $\dot{\gamma} = 0.5 \text{ s}^{-1}$ ) est appliqué pendant une déformation  $\dot{\gamma}t = 600$ , et la fréquence d'acquisition des images est de 3 Hz.

Comme nous le verrons dans le Chapitre 4, lors de l'analyse de ces images le gap est divisée en 60 tranches concentriques d'égale épaisseur. Dans chacune de ces tranches, l'intensité moyenne (la concentration en rhodamine) est calculée à chaque instant afin de déterminer l'évolution des profils de concentration. Cela étant, pour obtenir une mesure quantitative il faut corriger ces profils en prenant en compte la repartition inhomogène des particules dans le gap ; en effet il est bien connu que les zones en très proche paroi présentent un excès de particules. Pour corriger cette inhomogénéité, les profils sont normalisés par le profil d'intensité obtenu lorsque la répartition du colorant est homogène (à la fin de l'expérience).

A la fin de chaque expérience ( $\sim 30$  minutes), la cellule est vidée intégralement, et l'ensemble du protocole expérimental est répété, afin de préparer à nouveau le système pour retrouver les conditions initiales. Les résultats de ces expériences seront présentés et discutés dans le Chapitre 4.

### 2.6.3 Caractérisation de la cinématique de déformation pour une meilleure compréhension du processus de mélange

Dans cette partie, pour étudier les processus de mélange dans les suspensions cisillées, j'adopte une approche différente qui se base sur la caractérisation de la cinématique de déformation dans les suspensions de particules cisillées. Ce travail expérimental, numérique et théorique constitue certainement la plus grande contribution de ce travail de thèse.

Rappelons avant tout que le mélange résulte du couplage entre l'advection et la diffusion moléculaire. Lorsque par exemple une goutte de colorant est advectée dans un écoulement de cisaillement, elle s'étire dans la direction de l'écoulement et se comprime en proportion dans la direction transverse. Au bout d'un certain temps, la goutte atteint une dimension transverse pour laquelle l'effet de la diffusion moléculaire devient significatif. Les niveaux de concentration dans la goutte commence alors à chuter et la distribution de concentration s'homogénéise progressivement dans l'ensemble du système. Le point important est que la connaissance de la cinématique de déformation permet, quelque soit la valeur du coefficient de diffusion moléculaire, de prédire complètement ce processus de mélange. Le formalisme théorique permettant ce faire ce lien sera présenté en début de Chapitre 5. Dans ce chapitre, consacré aux techniques expérimentales, je présente comment nous avons caractérisé la cinématique de déformation induite par la présence de particules dans les suspensions cisillées.

Caractériser la cinématique de déformation revient à déterminer l'allongement des lignes matérielles induit par le champ d'advection. Comme l'illustre la Figure 2.19, une goutte de colorant initialement injectée dans la suspension s'étire sous l'effet du champ d'advection. Le point crucial est de savoir déterminer l'évolution temporelle de sa longueur déroulée  $l(t)$ .

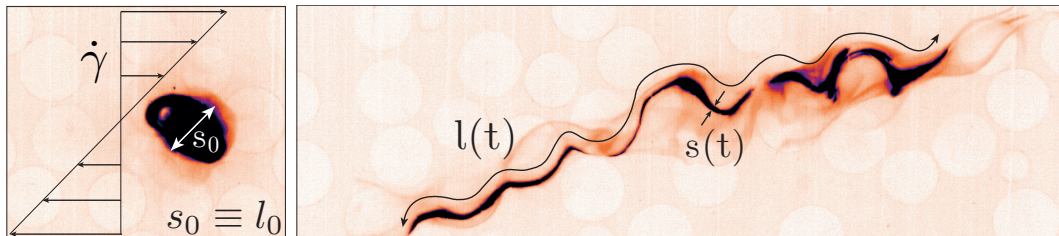


FIGURE 2.19 – Longueur déroulée  $l(t)$  et largeur transverse  $s(t)$  d'une goutte de colorant soumise à un cisaillement.

J'ai d'abord tenté de mesurer cette longueur déroulée directement à partir de techniques d'analyses d'images. Néanmoins, comme on le verra, cette méthode ne peut s'appliquer que

pour des faibles déformations. Je présente ensuite une seconde approche inspirée de la ‘Diffusive Strip Method’ développée par Meunier & Villermaux [63], qui permet de déterminer les lois d’étirement pour des déformations virtuellement infinies.

### 2.6.3.1 Première approche : analyse d’image

L’objectif de cette expérience est d’observer comment une goutte de colorant injectée au cœur d’une suspension de particules non-Browniennes est étirée lorsqu’un cisaillement continu est appliqué. J’ai réalisé cette expérience dans la cellule de cisaillement plan-plan, en suivant le protocole suivant :

1. La cellule est remplie d’une suspension de fraction volumique  $\phi = 35\%$  jusqu’à affleurer les cylindres.
2. La suspension est ensuite thermalisée pendant  $\sim 30$  min à l’aide du bain thermostaté, pour ajuster au mieux l’indice optique du fluide (§2.1.2.1) à celui des particules et obtenir la meilleure transparence de la suspension possible.
3. La suspension est cisailée pour homogénéiser la répartition des particules.
4. Le hublot de PMMA (§2.2.2) est mis en place, la nappe laser (2 W) et la caméra sont ajustées.
5. Une goutte de forme cylindrique est injectée au cœur de la suspension (au niveau de la ligne neutre) à l’aide d’une aiguille glissée au travers du trou percé dans le hublot de PMMA. Pour minimiser la convection, le colorant est préalablement thermalisé à la même température que la suspension. Pour éviter les problèmes d’absorption (§2.3.1), la concentration en rhodamine dans la goutte est  $\leq C_{rhoda}^{max}$ .
6. Un cisaillement continu ( $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$ ) est appliqué pour une déformation  $\gamma \sim 20$ , et une image de la goutte est prise toutes les secondes. Les réglages typiques de la caméra sont : un temps de pose de 7/100 s, une ouverture  $f/11$ , et un ISO de 320.

Pour étudier l’influence de la présence des particules sur le mélange, nous avons comparé l’évolution d’une goutte de colorant cisailée dans un fluide pur (sans particules) à l’évolution de la même goutte cisailée cette fois dans une suspension, cf. Figure 2.20. Les perturbations induites par la présence des particules génèrent une dispersion beaucoup plus rapide de la goutte de colorant.

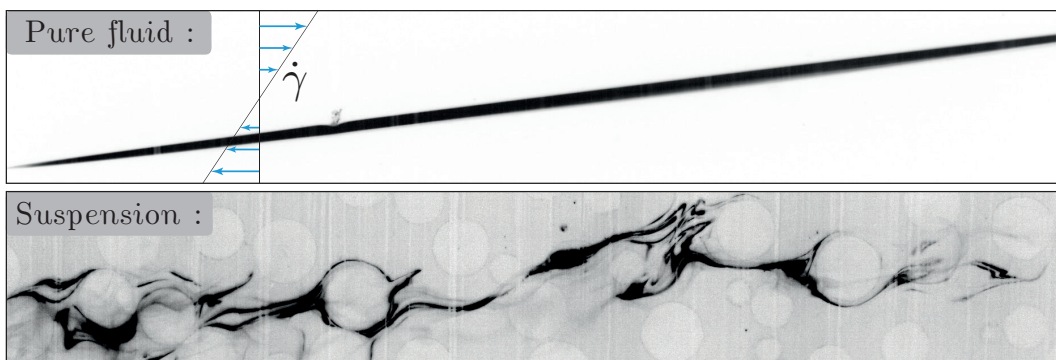


FIGURE 2.20 – Une goutte de rhodamine 6G (en noir) est injectée dans le fluide pur (en haut) et dans la suspension à  $\phi = 35\%$  (en bas), puis le système est cisailé de façon continue. En l’absence de particule, la goutte est linéairement étirée par le cisaillement simple. En présence de particules, la goutte est dispersée beaucoup plus rapidement. Les deux images sont prises pour une même déformation  $\gamma$ .

Comme introduit précédemment, la détermination des lois d’étirement revient à mesurer directement l’évolution temporelle de la longueur déroulée  $l(t)$  de la goutte de colorant.



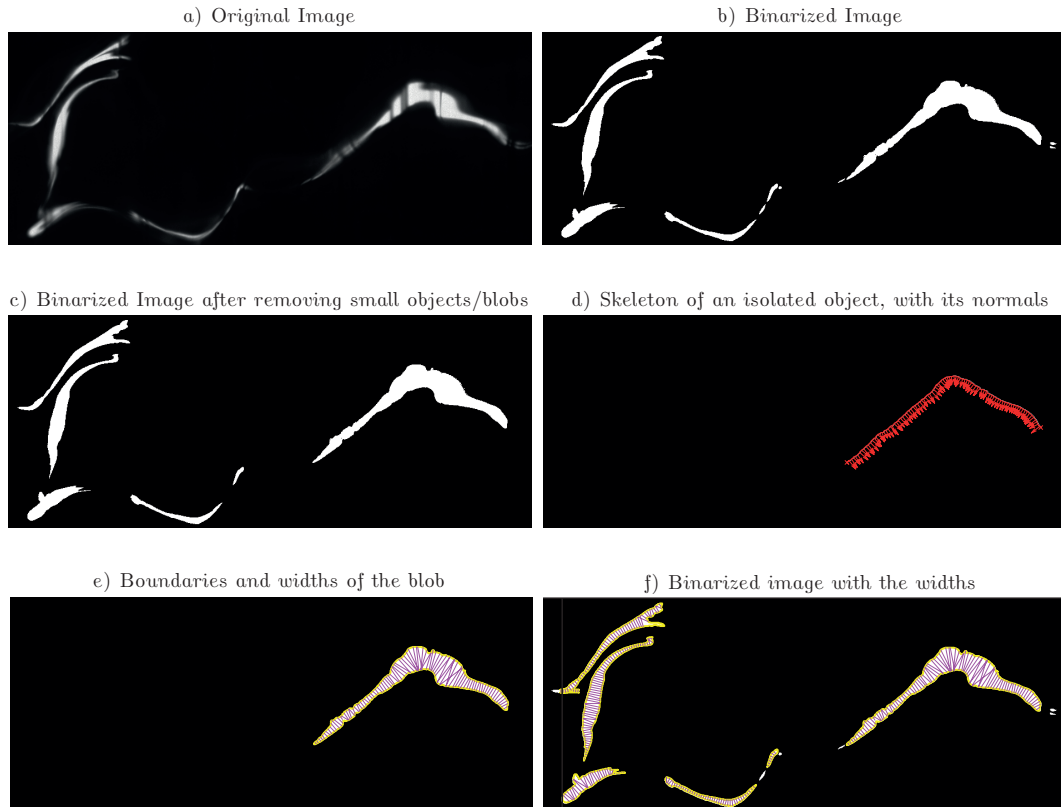


FIGURE 2.21 – Etapes successives de l’analyse d’image pour mesurer la distribution des dimensions transverses de la goutte de colorant. La rhodamine apparaît ici en blanc.

Cela étant, la goutte de colorant s’étire rapidement, s’étalant au-delà des limites de l’image, cf. Figure 2.20 ; à partir des images, la mesure de la longueur déroulée ne peut donc être réalisée que sur des petites déformations (typiquement  $\gamma \approx 5$ ), trop faibles pour déterminer l’évolution temporelle de  $l(t)$ .

Une manière de surmonter cette limitation consiste à mesurer la distribution des largeurs transverses  $s(t)$  de la goutte de colorant. En considérant l’équation de conservation de la masse  $s_0 l_0 = s(t)l(t)$ , avec  $s_0$  et  $l_0$  les dimensions initiales de la goutte de colorant, la mesure de la distribution des dimensions transverses de la goutte  $P(s)$  permet de déterminer celle des longueurs  $P(l) = P(s) \frac{ds}{dl}$ . En faisant l’hypothèse que l’évolution de la portion de la goutte qui reste dans l’image est statistiquement représentative de l’évolution de l’ensemble de la goutte de colorant, les lois d’étirement peuvent donc être mesurées sur des déformations plus grandes en s’intéressant à la distribution des dimensions transverses  $s(t)$  de la goutte.

Pour mesurer la distribution des largeurs de la goutte de colorant, j’ai développé la méthode d’analyse d’image suivante :

1. L’image originale est binarisée, cf. Figure 2.21 (b)
2. Les plus petits objets sont détectés et retirés de l’image, cf. Figure 2.21 (c)
3. le ‘squelette’ de chaque objet est détecté, et les normales au squelette sont déterminées, cf. Figure 2.21 (d)
4. les largeurs sont mesurées en comptant le nombre de pixels de l’objet présents sur chacune des normales du squelette correspondant, cf. Figure 2.21 (e)

Cette approche fonctionne dans des cas simples, comme pour une goutte de colorant cisailée dans un fluide pur et étirée de façon homogène, cf. Figure 2.22 (a). Dans cette

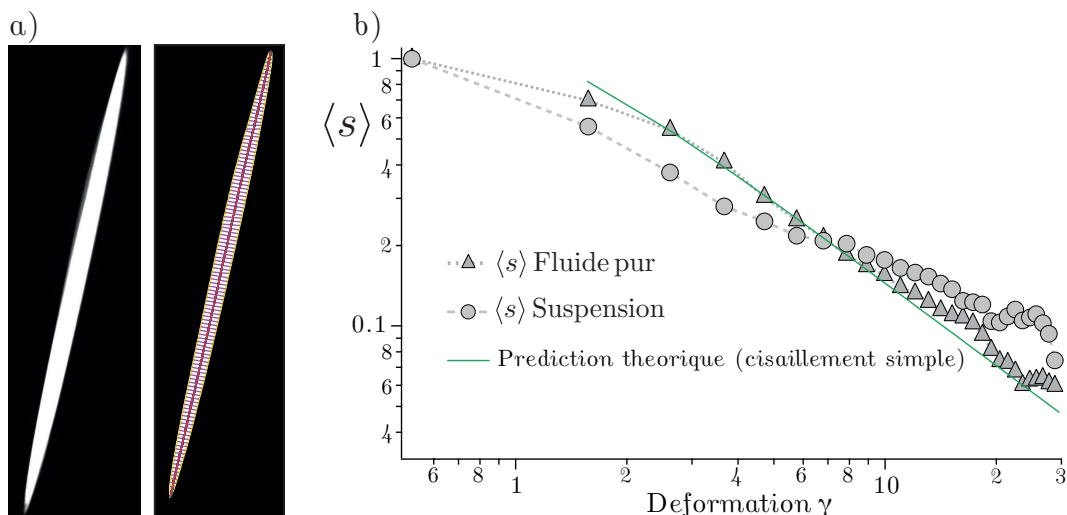


FIGURE 2.22 – a) Application du traitement dans le cas du fluide pur. b) Largeur transverse moyenne obtenues par analyse d'image.

configuration la largeur moyenne obtenue par analyse d'image est en accord quantitatif avec les prédictions théoriques pour des déformations pouvant aller jusqu'à  $\gamma \approx 20$ , cf. Figure 2.22 (b). Cependant, dans le cas d'une suspension, la présence des particules perturbe l'écoulement ; l'étirement est alors fortement inhomogène, et la forme de la goutte devient rapidement complexe (cf. Figure 2.20). La méthode d'analyse d'image est limitée car elle ne détecte pas les portions de la goutte dans les régions de forts étirements où la dimension transverse est de l'ordre du pixel. Ainsi, pour des déformations  $\gamma > 7$ , la largeur transverse moyenne obtenue par analyse d'image est biaisée (cf. Figure 2.22 (b)).

L'approche par analyse d'image est donc limitée aux faibles déformations. Cela étant, cette expérience nous a permis d'illustrer qualitativement la complexité de la cinématique de déformation induit par la présence des particules.

### 2.6.3.2 Seconde approche : la 'Diffusive Strip Method'

Pour déterminer quantitativement les lois d'étirement sur de larges déformations, j'ai employé une approche inspirée de la 'Diffusive Strip Method' développée par Meunier & Villermaux [63]. L'idée de la 'Diffusive Strip Method' est d'utiliser le champ de vitesses de la phase fluide afin d'advecter numériquement des lignes matérielles passives afin de reconstruire leur historique d'étirement. Les lignes matérielles sont discrétisées par un certain nombre de traceurs passifs de coordonnées  $\mathbf{x}$ . Ces traceurs sont advectés indépendamment à chaque incrément de temps  $\Delta t$  en fonction de leur vitesse locale dans l'écoulement selon  $\mathbf{x}(t + \Delta t) = \mathbf{x}(t) + \mathbf{v}(\mathbf{x})\Delta t$ . Afin de bien décrire la cinématique de cette ligne, de nouveaux traceurs sont ajoutés le long de la ligne matérielle lorsque sa longueur ou sa courbure locale augmente. Les détails de la procédure de raffinement peuvent être trouvés dans l'article de Meunier & Villermaux [63].

La 'Diffusive Strip Method' a été initialement développée afin d'advecter des lignes matérielles sur un champ de vitesses analytiquement connu. La nouveauté ici est que l'on a appliqué cette méthode sur un champ d'advection mesuré expérimentalement (cf. §2.4). Pour cela, plusieurs modifications du code Matlab développé par Meunier & Villermaux ont été apportées :

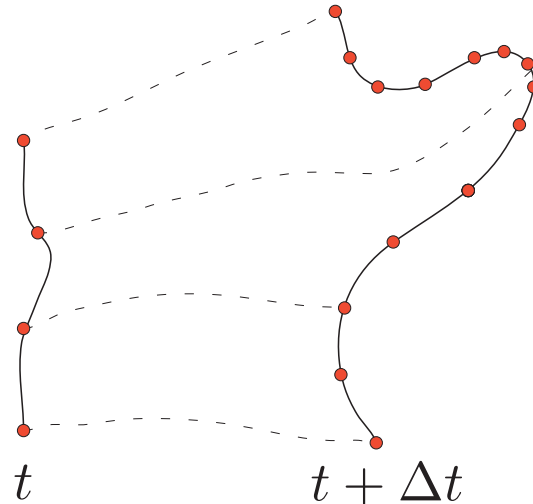


FIGURE 2.23 – Schéma de l'advection d'une ligne matérielle entre 2 instants successifs.

1. Pour advecter un traceur passif, la vitesse locale est calculée par interpolation spatiale du champ de vitesses que l'on a obtenu expérimentalement par PIV. Cette étape supplémentaire d'interpolation est coûteuse en temps de calcul.
2. Afin d'obtenir une bonne description statistique des lois d'étirement, un grand nombre de lignes matérielles, initialement placées et orientées de façon aléatoire dans l'écoulement, sont advectées.
3. Lorsqu'une ligne matérielle atteint l'une des extrémités du champ de vitesses, elle est ré-injectée aléatoirement au centre du champ de vitesses.
4. Il peut arriver qu'un traceur se retrouve à l'intérieur d'une particule ; soit après ré-injection, soit à cause de la méthode Eulérienne d'intégration. Dans ce cas, la ligne matérielle est 'gelée', *i.e.* le processus d'advection est mis en pause, le temps que la particule s'éloigne.

La Figure 2.24 montre l'historique d'étirement de deux lignes matérielles jusqu'à une déformation de 15 (cf. vidéothèque Chapitre5-Movie3). La ligne rouge, qui s'étire et se replie sur elle-même, développe un pattern très similaire à ceux qu'on a déjà pu observer dans l'expérience de la goutte cisailée présentée dans le paragraphe précédent, cf. Figure 2.20. La ligne matérielle bleue, qui a subi la même déformation macroscopique que la ligne rouge, est elle beaucoup moins étirée. Cet exemple illustre comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, la forte inhomogénéité de l'étirement. Ces observations indiquent que les lois d'étirement doivent être déterminées de façon statistique, *i.e.* à partir de l'historique d'étirement d'un large ensemble de lignes matérielles. Cela étant, un problème limite notre analyse car au bout d'une certaine déformation  $\gamma \approx 10$ , un grand nombre de lignes occupent toute la largeur du champ de vitesses, cf. Figure 2.25. Cette limitation est facilement surmontable en réalisant que, pour la caractérisation des lois d'étirement, les objets élémentaires d'intérêt ne sont pas les lignes matérielles dans leur ensemble, mais les segments qui composent ces lignes. J'ai par conséquent développé une nouvelle procédure en me focalisant sur l'évolution des segments, chacun traité de façon indépendante :

1. Un grand nombre de segments (composés de deux traceurs) de longueur initiale  $d/20$ , placés et orientés de façon aléatoire dans l'écoulement, sont advectés.
2. A chaque fois que la longueur d'un segment double, il est divisé en 2 segments distincts qui sont par la suite advectés indépendamment.
3. Si un segment atteint un bord du champ de vitesses, il est ré-injecté au centre.

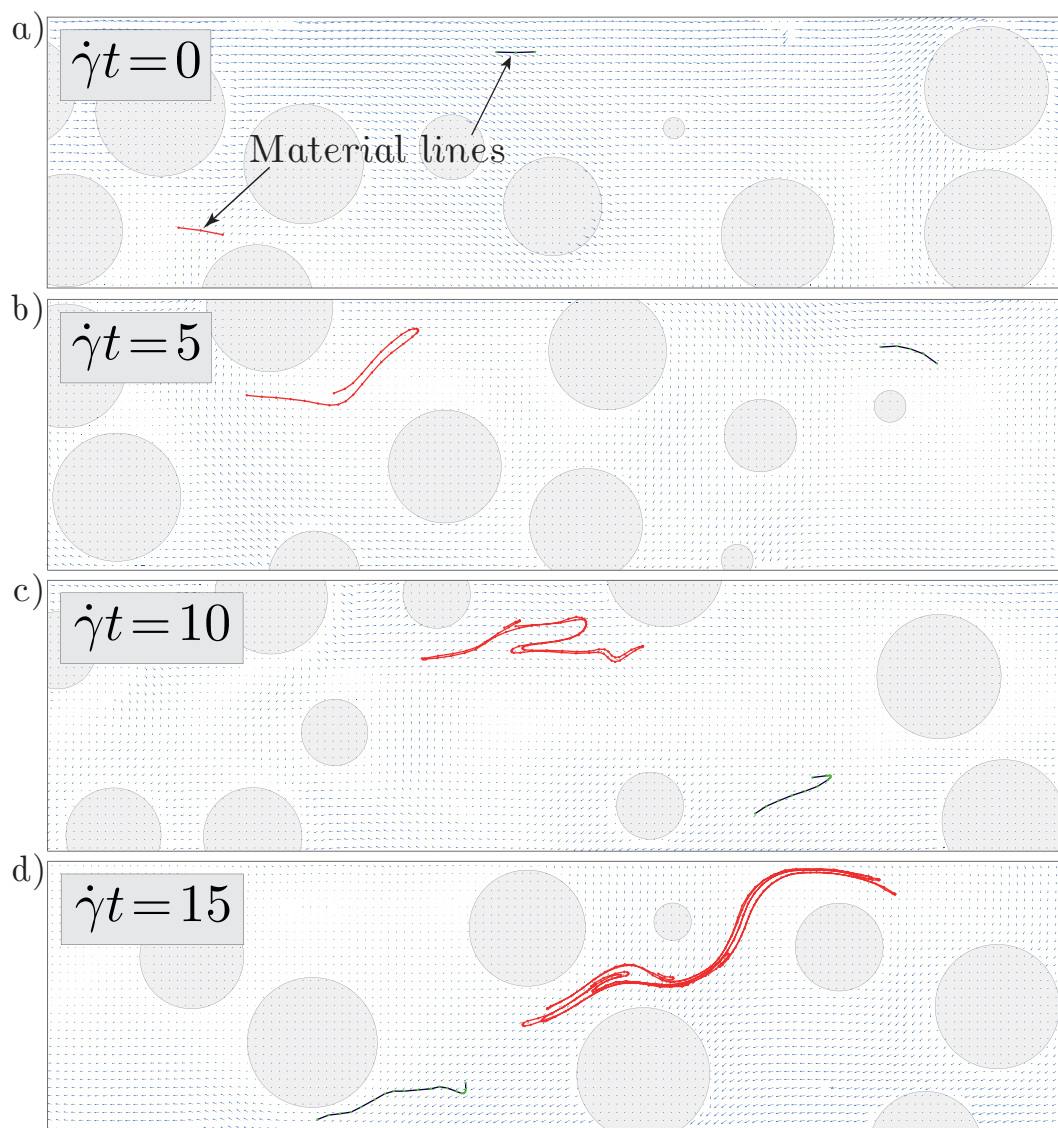


FIGURE 2.24 – Exemple d'étirement de deux lignes matérielles advectées numériquement sur le champ de vitesses mesuré expérimentalement.

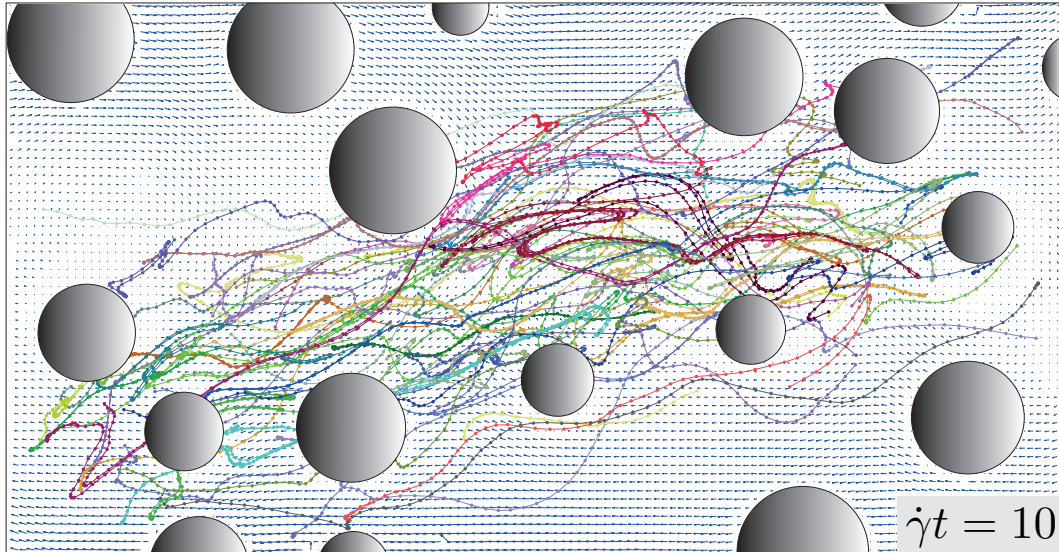


FIGURE 2.25 – Exemple de lignes matérielles étirées pour une déformation  $\gamma = 10$ .

4. Lorsqu'un segment empiète sur une particule, où le champ de vitesses n'est pas défini, il est 'gelé' le temps que la particule s'éloigne. Notez que la déformation pour laquelle les segments sont gelés n'est pas prise en compte ; la déformation totale vue par chacun des segments est gardée en mémoire afin de réaliser des statistiques d'étirement à partir de segments ayant tous subi la même déformation.

L'élongation moyenne, l'écart-type, et les distributions d'élongations correspondantes (pour des déformations  $\gamma = 5, 10, 15, 20$ ) seront présentés et discutés dans le Chapitre 5. Les distributions sont construites à partir de l'historique de l'étirement d'un grand nombre statistique de segments, advectés sur 3 champs de vitesse indépendants. Un calcul distinct a été réalisé pour chacune des 4 distributions d'élongations présentées (pour  $\gamma = 5, 10, 15, 20$ ), en choisissant un nombre initial de segment tel qu'en fin de calcul, il y ait un total de 25 000 segments. La contribution de chacun des segments à la distribution d'élongations est pondérée par sa longueur initiale  $l_0 = (d/20)/2^n$ , avec  $n$  le nombre de fois que le segment à été divisé en deux.

Cette nouvelle procédure, basée sur le suivi individuel de segments, permet d'explorer les lois d'étirement sur des déformations virtuellement infinies, limitées seulement par la puissance de calcul disponible. Ici, les calculs ont été réalisés en parallèle sur 9 ordinateurs différents pendant  $\sim 4$  jours.

On pourra remarquer (après avoir consulté le Chapitre 5) que les distributions d'étirements sont statistiquement mieux convergées pour les forts étirements. Cette caractéristique est liée à la méthode qui crée un grand nombre de segments dans les zones qui sont fortement étirées. Les zones faiblement étirées sont par conséquent moins bien représentées. Par exemple, étant donné la forme log-normale des distributions (que l'on présentera en détails par la suite), pour obtenir un segment qui ait subi une compression  $\rho = l(t)/l_0 = 10^{-3}$  après une déformation  $\gamma = 20$ , il faudrait pour cette déformation avoir une population de  $10^6$  segments : ce qui serait très coûteux en temps de calcul ! Cela étant, les distributions d'élongations étant log-normales et très largement distribuées (sur plus de  $\sim 8$  décades), le poids statistique de ces faibles étirements est négligeable. Les distributions d'élongations présentées sont donc statistiquement bien résolues.

Le Borgne *et al.* [3] ont employé une approche similaire pour mesurer les lois d'étirement dans un milieu poreux. Dans leur procédure, les régions de compression et d'étirement sont aussi bien décrites l'une que l'autre car ils advectent une ligne composée d'un nombre de

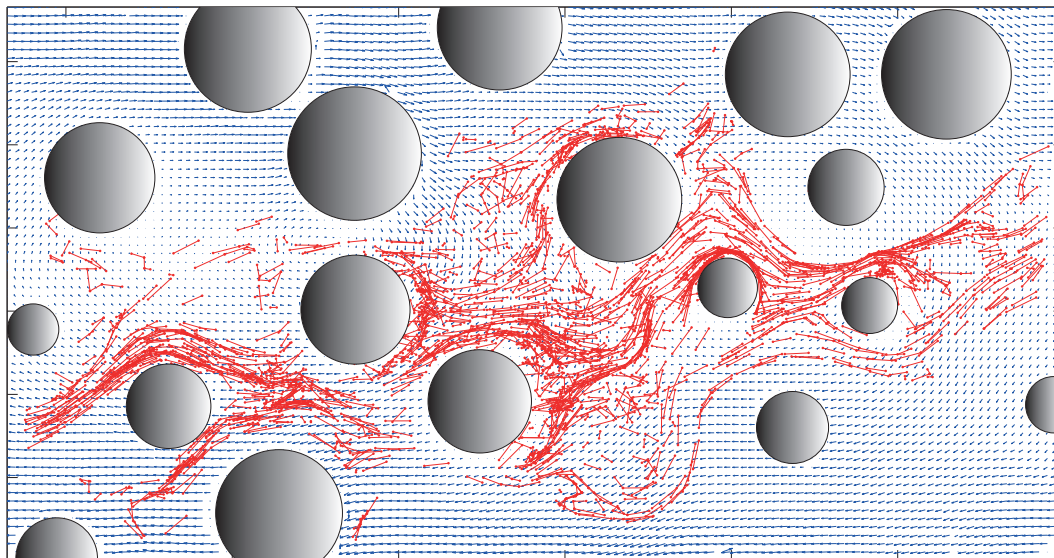


FIGURE 2.26 – Exemple de segments advectés indépendamment pour une déformation  $\gamma = 13$ .

traceurs ( $5 \times 10^5$ ) constant ; ne subdivisant pas les segments en sous-segments plus petits, les zones fortement étirées ne sont pas sur-représentées.

\*  
\* \*

J'ai introduit dans ce chapitre l'ensemble des techniques expérimentales développées pour réaliser une suspension transparente iso-dense permettant des visualisations directes au sein même de la suspension cisailée. J'ai également décrit en détails les méthodes de visualisation, ainsi que les dispositifs et protocoles expérimentaux. Les chapitres suivants seront consacrés aux trois études expérimentales que j'ai réalisées au cours de cette thèse.

---

## Expérience de Taylor dans une suspension de particules cisailée de façon périodique

---

Dans ce chapitre, nous nous sommes inspirés de l'expérience très connue de G. I. Taylor (cf. film Chapitre3-Movie1) qui illustre la réversibilité des écoulements de Stokes. En ce qui nous concerne, cette expérience est particulièrement intéressante car elle démontre à quel point il est difficile de mélanger un fluide visqueux : l'absence d'inertie fait que la goutte de colorant se reforme à l'identique à la fin de chaque cycle de cisaillement. L'objectif ici est d'étudier, dans cette même configuration d'écoulement périodique, comment la présence de particules solides dans le fluide influe sur l'évolution de la goutte de colorant.

Ce travail est présenté sous la forme d'une Lettre, "*Taylor's experiment in a periodically sheared particulate suspension*", à paraître dans *Physical Review Fluids* (Souzy *et al.* 2016).

### 3.1 Présentation de la lettre

A l'inverse d'un fluide visqueux (sans particules) qui, sous sollicitation périodique, s'écoule de façon réversible, Pine *et al.* [40] ont mis en évidence que dans une suspension, les particules se comportent de façon irréversible lorsque l'amplitude de déformation imposée dépasse une valeur critique. Au-delà de ce seuil, les trajectoires stroboscopiques des particules (dont la position n'est observée qu'à la fin de chaque cycle de cisaillement) suivent alors une marche aléatoire. Lorsque le mouvement des particules est irréversible, on s'attend à ce que l'écoulement de la phase fluide soit lui aussi irréversible. L'objectif de la présente Lettre est de revisiter l'expérience de Taylor en la réalisant cette fois dans une suspension de particules afin d'étudier l'effet de cette transition d'irréversibilité sur l'évolution de la goutte de colorant.

On pourra remarquer que cette configuration d'écoulement périodique est particulièrement intéressante car à la fin de chaque cycle, la partie réversible de l'écoulement s'annule : en observant le système de façon stroboscopique (à la fin de chaque cycle), on peut donc isoler l'effet des fluctuations induites par les collisions entre particules. Nous nous plaçons ici dans cette configuration pour caractériser l'influence des particules sur la dispersion d'une goutte de colorant, en observant sa dispersion au cours des cycles de cisaillement.

### 3.1.1 Résumé des résultats

- Au-delà de la déformation critique, la présence des particules brise la réversibilité du système : la goutte de colorant se disperse alors rapidement dans le fluide environnant.

- Nous avons caractérisé la dispersion de la goutte de colorant par un coefficient de dispersion effectif. Il se trouve être du même ordre, voire légèrement supérieur au coefficient de diffusion des particules. Cette différence résulte probablement du fait que le coefficient de dispersion effectif de la goutte résulte à la fois des fluctuations induites par les mouvements de translation et de rotation des particules alors que le coefficient de dispersion des particules ne traduit que l'aspect translationnel de leur mouvement.

- A forte amplitude de déformation, le coefficient de dispersion effectif de la goutte de colorant peut être  $\approx 4$  ordres de grandeur plus grand que le coefficient de diffusion moléculaire du colorant. Cisailer une suspension de façon périodique est donc un bon moyen d'intensifier le mélange dans des conditions de faible nombre de Reynolds.

- Il est intéressant de noter que le coefficient de dispersion de la phase fluide obtenu au-delà de la déformation critique est du même ordre de grandeur que celui obtenu en cisaillement continu (cf. Chapitre 4). Ce résultat pourrait être utile d'un point de vue applicatif. Dans les dispositifs de mélange microfluidiques utilisant des suspensions [55], on peut ainsi envisager d'appliquer un écoulement continu mais aussi périodique.

### 3.1.2 Questions ouvertes

Cette étude reste préliminaire car nous avons simplement caractérisé le processus par un coefficient de dispersion effectif de la phase fluide. Il serait particulièrement intéressant d'étudier cette configuration avec l'approche 'lamellaire' que nous allons développer dans le Chapitre 5. Cette configuration d'écoulement périodique devrait se distinguer de la configuration d'écoulement continu étudiée dans le Chapitre 5 car l'écoulement oscillant force les filaments à se regrouper dans un espace restreint. Cette configuration devrait donc favoriser la coalescence entre filaments et ainsi donner lieu à une évolution différente des distributions de concentration.

## 3.2 Copie de la Lettre

### Taylor's experiment in a periodically sheared particulate suspension

Mathieu Souzy<sup>1</sup>, Phong Pham<sup>1,2</sup> & Bloen Metzger<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Aix-Marseille Université, IUSTI-CNRS UMR 7343, 13453 Marseille Cedex 13, France*

<sup>2</sup>*Department of Chemical Engineering, University of Florida, Gainesville, Florida 32611, USA*

(Dated: April 15, 2016)

We revisit Taylor's experiment investigating the evolution of a blob of dye in a periodically sheared suspension of non-Brownian particles. Above a critical strain amplitude, particulate suspensions are subject to phase transition where reversibility is lost and particles fail to return to their original positions. We investigate the effect of this transition on the dispersion of a blob of dye. Beyond the critical strain, the dispersion of the blob is found to increase significantly. The dispersion coefficient of the blob of dye is measured and compared to the self-diffusivity coefficient of the particles.

In 1966, G.I. Taylor illustrated in a now famous experiment the reversibility of Stokes flow [64] (cf. Vidéo Chapitre3-Movie1). A blob of dye is initially injected in a Couette cell filled with a very viscous and Newtonian fluid. When rotating one of the cylinder, the fluid is linearly sheared and the blob of dye stretches into a thin filament until almost disappearing. Then, upon reversing the rotation for the same number of turns, the drop astoundingly recovers its initial shape (except for slight blurring due to molecular diffusion).



Inspired by Taylor’s work, we performed the exact same experiment but in a suspension of non-Brownian particles to investigate how the presence of particles within the fluid breaks the reversibility of the flow and influences the dispersion process of the blob of dye. Under periodic shear, Pine *et al.* [40] demonstrated that non-Brownian suspensions undergo a dynamical phase transition. For a given particulate volume fraction and a small enough strain amplitude, the suspension relaxes to an absorbing reversible state in which particles return to their original position after every cycle of shear. However, when the strain amplitude exceeds a critical value  $\gamma_c$ , which depends on the volume fraction and the particle roughness [49], the suspension transitions to a fluctuating state : the particles do not return to their original positions and, when tracked stroboscopically at the end of each cycle of shear, the particles exhibit large fluctuations analogous to a random walk. In that fluctuating state, the loss of reversibility of the particles motion should also induce a loss of reversibility in the fluid motion. The goal in the present Letter is to perform Taylor’s experiment in a particulate suspension to study the effect of this transition on the dispersion of the blob of dye.

Under continuous shear, the phenomenon called “shear induced-diffusion”, which was widely investigated [6,7,19,20,38,45,48,49], was shown to significantly enhance the transfer of heat [19,51] or mass [53,65] across suspensions of non-Brownian particles. This enhancement occurs since under shear, particles within the fluid constantly collide with one another and change streamlines. The particles thus generate disturbances within the fluid which promote the dispersion of the scalar (temperature or concentration), prelude to its subsequent mixing. Particles also significantly affect transfers close to boundaries : the particle rotation was shown to disrupt the diffusive boundary layer by a ‘rolling-coating effect’ (Souzy *et al.* [65]) which convects the scalar at a constant rate from the wall, where it is injected, to the bulk of the suspension.

The dispersion enhancement of a scalar field has been already quite studied in suspensions undergoing a continuous shear flow, but it has yet never been studied under periodic shear. Our motivation is that this latter flow configuration is particularly appealing since, after each cycle of shear, the affine part of the flow (the reversible part) cancels out. Therefore, by measuring the evolution of the blob of ink stroboscopically, *i.e.* at the end of each cycle of shear, one can investigate the blob’s dispersion solely focusing on the effect of the fluctuations induced by the particles, not having to account for the background linear stretching as in a continuous shear.

An original experimental setup was developed to perform direct visualizations of the dispersion of a blob of dye in a periodically sheared suspension of non-Brownian particles. By measuring the diffusion coefficients of both the particle and the fluid phases, we find that the blob’s dispersion follows the same dynamical phase transition as the particles.

The experimental setup, shown in figure 3.1(a), consists of a transparent cell within which a transparent mylar belt, mounted tightly on two vertical rotating cylinders, generates a linear shear flow. A precision rotation stage drives the rotation of one of the vertical cylinders. The fluid is a Newtonian mixture of Triton X-100 (73.86 wt %), zinc chloride (14.24 wt %) and water (11.90 wt %), identical to that used in Souzy *et al.* [65]. Its viscosity  $\eta=3$  Pa s is large enough to ensure a viscous flow ( $Re \approx 10^{-4}$ ) and its composition was chosen to match both the particle density ( $\rho_f=\rho_p=1.19$  g.cm $^{-3}$ ) to avoid sedimentation, and their optical index of refraction. A small amount of hydrochloric acid ( $\approx 0.05$ wt%) is added to the solution to prevent the formation of zinc hypochlorite precipitate, thereby significantly improving the optical transparency of the solution. The temperature of the setup is also adjusted ( $\pm 0.05^\circ\text{C}$ ) with a water-bath jacket connected to a cryo-thermostat in order to finely tune index-matching between the fluid and the particles. We use mono-disperse spherical PMMA beads from Engineering Laboratories Inc. with a diameter  $d=2$  mm which were chosen for their high surface quality and good transparency. Note that, above the region of interest, a small plexiglass window is placed on the free surface of the suspension to avoid its deflection during shear which would deteriorate the visualization. A small hole, through the window, is used to inject the blob of dye in the middle of the

suspension with a thin needle. The molecular diffusion coefficient of the dye in the fluid at rest is  $D_0 \approx 10^{-13} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$  [60]. All the experiments were done at a volume fraction of  $\phi = 35\%$ .

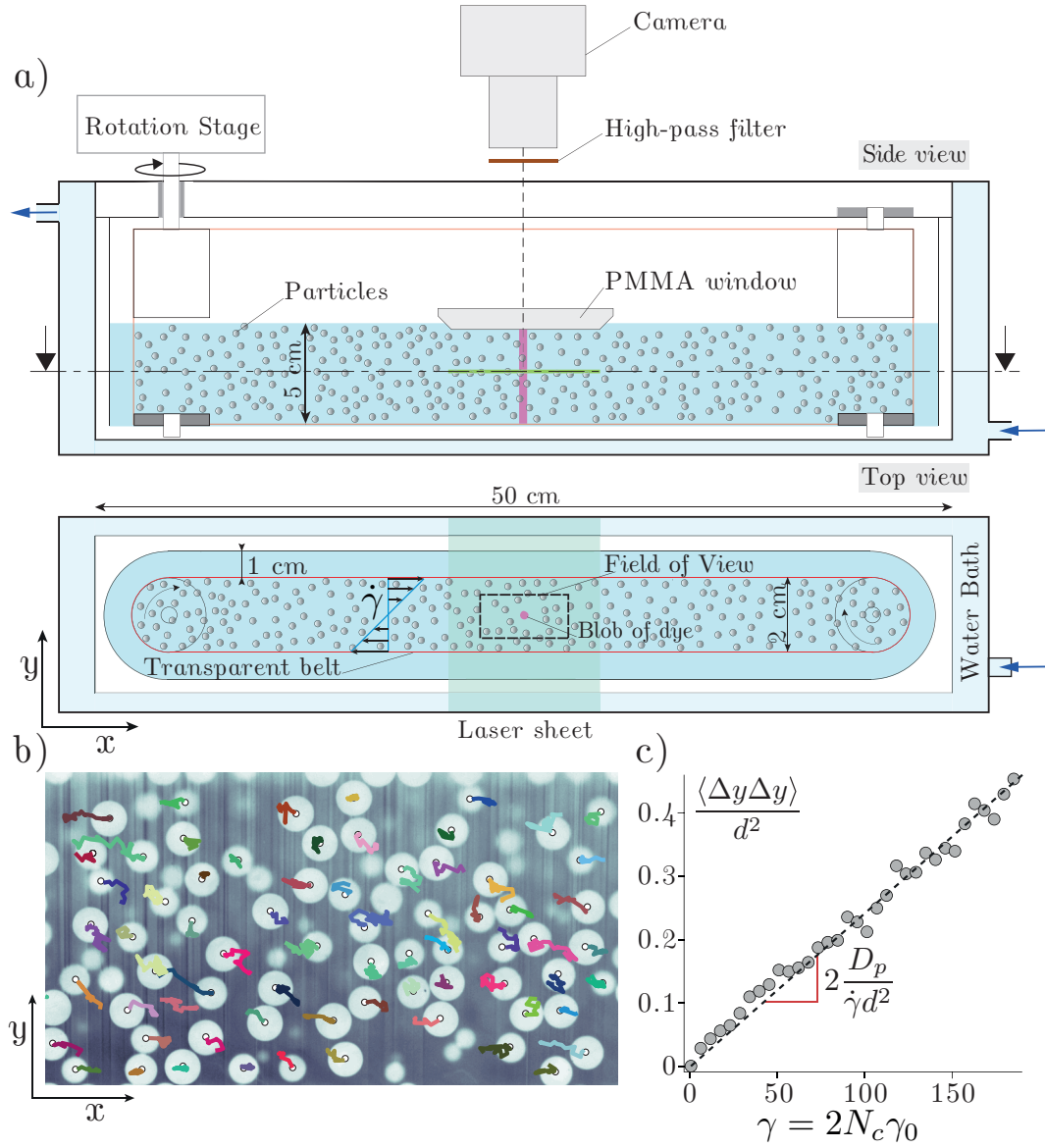


FIGURE 3.1 – a) Schematic of the setup, top and side views. b) Image of the suspension seen from the top (particles appear as white discs) and stroboscopic particle trajectories for cycles of shear of strain amplitude  $\gamma_0 = 2.8$ . c) Corresponding particle mean square displacement versus total accumulated strain  $\gamma = 2N_c \gamma_0$ .

Two types of experiments were performed i) to follow the evolution of the blob of dye, the suspension is perfectly transparent and the blob consists in a small injection of fluid doped with a fluorescent tracer (rhodamine 6G), ii) to track the particle motion, the whole fluid is homogeneously doped with the fluorescent dye. In both cases, visualization is performed from the top of the cell by imaging the rhodamine which fluoresces under illumination provided by a thin horizontal laser sheet ( $\approx 60 \mu\text{m}$  thick). Images are acquired using a high resolution camera (Nikon D-300S). A high-pass filter ( $\lambda > 550 \text{ nm}$ ) is used to eliminate direct light

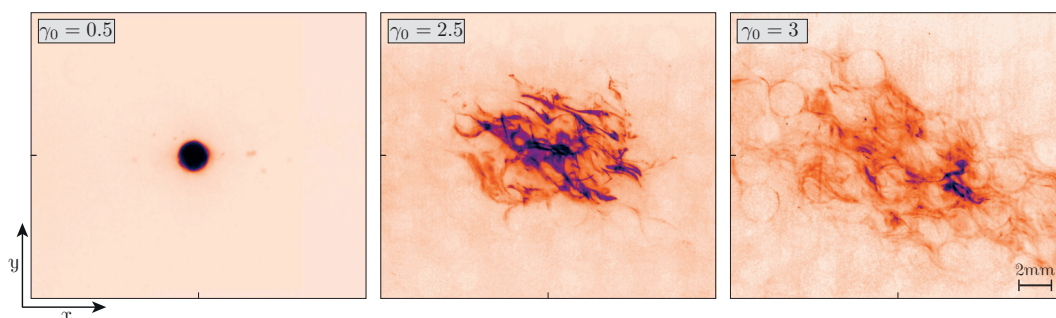


FIGURE 3.2 – Image of the blob after 40 cycles of shear performed at a strain amplitude :  $\gamma_0 = 0.5$ ,  $\gamma_0 = 2.5$ ,  $\gamma_0 = 3$ . Each image corresponds to the superposition of 10 pictures taken from 10 independent experiments performed at the same strain amplitude, see also Chapitre3-Movie2 and Chapitre3-Movie3.

reflexions and collect the light solely emitted by the fluorescent rhodamine.

As presented in figure 3.1(b), when the whole fluid is doped with rhodamine, the particles within the light sheet appear as white discs, while the fluid is dark. Note that all the particles have the same size ; the apparent size differences arises from their different vertical positions relative to the light plane. Images are first thresholded, then an algorithm of particle detection based on the circular Hough transform [19,66] is applied to find the center location of each particle within  $\pm 1$  pixel. Particles trajectories are then reconstructed by applying a tracking algorithm. A very important point is that for an experiment where periodic oscillations are performed at the strain amplitude  $\gamma_0$ , prior to injecting the blob or measuring the particle trajectories, the suspension is first pre-sheared at that strain amplitude for 40 cycles in order to let the suspension self-organize into its steady-state configuration [41]. To track the particles, images are taken continuously every strain increment of 0.1 while for blob experiments, images are only acquired at the end of each cycle of shear. A cycle of shear consists in slowly shearing (at  $0.1 \text{ s}^{-1}$ ) the suspension forward for a strain  $\gamma_0$ , then shearing it backward to the initial position. For each experiment,  $N_c$  cycles of shear are performed and the total accumulated strain is thus  $\gamma = 2N_c\gamma_0$ .

We first present results characterizing the dynamics of the particles. Trajectories of the particles are recorded continuously to be able to track particles from one cycle to the next. However, to quantify the amount of irreversibility, we compute the mean square displacement of the particles only using their positions at the end of each cycle. An example of such trajectories is represented in figure 3.1(b) for an experiment performed at large strain amplitude. The mean square displacement in the gradient ( $y$ -) direction  $\langle \Delta y \Delta y \rangle$ , where  $\Delta y = y(t) - y(t=0)$  and the angle brackets denote an average over all particles, is close to zero for small applied strain amplitudes. This means that the particle motion is reversible. However, for experiments performed at larger strains, the mean square displacement increases linearly with time indicating that the particles do not return to their original position and follow a diffusive behavior, see figure 3.1(c). Following Pine *et al.*, the slope of the particle mean square displacements is used to define a dimensionless particle diffusion coefficient  $D_p^* = \langle \Delta y \Delta y \rangle / (2d^2 \dot{\gamma} t)$  which quantify the irreversible motion of the particles. We recover the results of Pine *et al.* that particles, beyond a critical strain amplitude of  $\gamma_c \approx 2$  for the present volume fraction  $\phi = 35\%$  (equivalent of  $\gamma_c \approx 1$  with the definition of the strain amplitude used by Pine [40]), transit to a fluctuating state, see figure 3.4.

We now investigate the effect of this transition on the dispersion of a blob of dye. After pouring the suspension (without rhodamine) within the cell and pre-shearing it, a cylindrical blob of dyed fluid is injected at  $t = 0$  and with the fluid at rest in the middle of the shear cell. The blob has an initial diameter  $s_0 \simeq d$  and is aligned with the vorticity direction of the shear flow and centered on the neutral velocity plane. This results in a macroscopically two-dimensional initial configuration, and ensures that the blob does not drift with the flow.

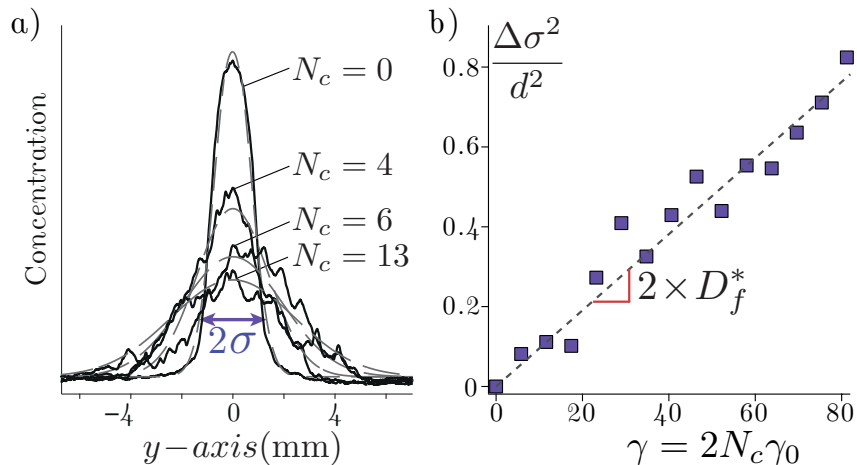


FIGURE 3.3 – a) Successive concentration profiles for a blob submitted to a strain amplitude  $\gamma_0=2.9$ . The profiles are obtained by averaging over 10 independent runs. The dashed curves correspond to the best gaussian fit. b) Evolution of the corresponding dimensionless relative variance  $\Delta\sigma^2/d^2$  as a function of the total accumulated strain  $\gamma = 2N_c\gamma_0$ .

The concentration of rhodamine within the blob was adjusted so that absorption of the light intensity can be neglected. The suspension is then slowly sheared back and forth over  $N_c=40$  cycles at the strain amplitude  $\gamma_0$ .

Figure 3.2(a, b, c) shows how the blob has evolved after 40 cycles of shear for experiments performed at different strain amplitudes. Note that each image is the superposition of pictures taken from 10 independent experiments performed with the same imposed strain amplitude. At small strain amplitude  $\gamma_0 = 0.5$ , as in Taylor’s experiment, the blob after each cycle of shear recovers its initial shape, see figure 3.2(a). Conversely, for larger applied strain amplitudes, the blob rapidly spreads in the surrounding medium, evolving towards a topology constituted of filament-like structures [2] (to visualize the continuous evolution of the blob, see Chapitre3-Movie2 and Chapitre3-Movie3). Larger strain amplitudes result, after the same number of cycles, into a larger dispersion of the blob.

More quantitatively, we can characterize the blob effective dispersion by examining its spreading. Figure 3.3(a) shows successive concentration profiles obtained by averaging the light-intensity level along the  $x$ -direction. The low concentration of rhodamine used for the experiments ensures a linear relation between light intensity and dye concentration. Two important observations can be made. First, the concentration distribution is normally distributed. The dashed curves are the best gaussian fit where, once the amplitude of the initial distribution (for  $N_c=0$ ) is fixed, the sole remaining adjustable parameter is the standard-deviation  $\sigma$ . Second, the relative variance of the concentration distribution  $\Delta\sigma^2(t) = \sigma^2(t) - \sigma^2(t=0)$  increases linearly with the total accumulated strain  $\gamma = 2N_c\gamma_0$  (equivalent to time), see figure 3.3(b). These two features evidence that the dispersion process of the blob, and thus of the interstitial fluid phase in between the particles, is diffusive. The effective dispersion coefficient of the fluid phase is provided by the classical definition

$$\Delta\sigma^2 = 2D_f t. \quad (3.1)$$

The dimensionless effective dispersion coefficient of the fluid phase,  $D_f^*$ , can be defined by the dimensionless form of equation 3.1 ( $\Delta\sigma^2/d^2 = 2\frac{D_f}{\gamma d^2}\gamma$ ) as  $D_f^* = D_f/\gamma d^2$  which corresponds to one half the slope of the linear fits presented on figure 3.3(b). Error bars are also estimated from the typical standard deviation between runs, see figure 3.4.

Similarly to the behavior of the particles, for the volume fraction  $\phi = 35\%$  investigated, above a critical strain  $\gamma_c \approx 2$ , the dispersion coefficient of the blob goes through an abrupt

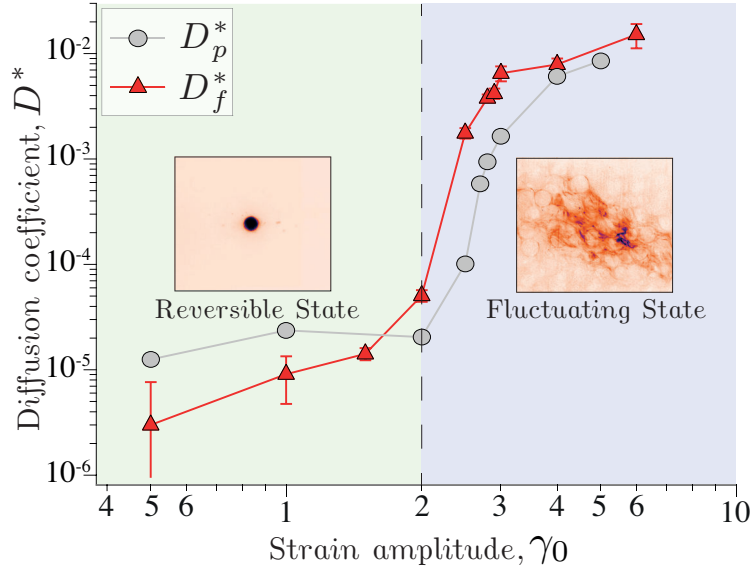


FIGURE 3.4 – Dimensionless self-diffusivity coefficient of the particle  $D_p^*$  and dimensionless dispersion coefficient of the fluid  $D_f^*$ , as a function of the applied strain amplitude  $\gamma_0$ . Reversibility is lost above a critical strain amplitude  $\gamma_c \approx 2$ .

transition, see figure 3.4 where  $D_p^*$  and  $D_f^*$  are plotted versus the applied strain amplitude  $\gamma_0$ . The loss of reversibility induced by the presence of the particles significantly accelerates the dispersion process. Indeed, if one was only considering the effect of molecular diffusion, *i.e.* if the blob was sheared in a pure fluid without particle, the transverse dispersion coefficient of the dye would be  $D_f = D_0$ , leading to a dimensionless effective dispersion coefficient of the fluid phase,  $D_f^* = D_0/\dot{\gamma}d^2 = 10^{-6}$ . In the fluctuating state, (beyond  $\gamma_c$ ), the dimensionless dispersion coefficient of the blob is  $\approx 10^{-2}$  so about 4 orders of magnitude larger than that of molecular diffusion alone. Note that, as one can guess from figure 3.2, the dispersion coefficients in the flow direction (not shown here) follow very similar trends as those in the gradient direction.

For  $\gamma_0 < \gamma_c$ , in the so-called reversible state, we measure effective diffusion coefficients of  $\approx 10^{-5}$  both for the particles and for the blob. For the particles, which are non-brownian,  $D_p^*$  should vanish when  $\gamma_0 \rightarrow 0$ . This small discrepancy arises from experimental artefacts which are noise from the Hough detection algorithm (detection of the particle center locations within  $\pm 1$  pixel) and unavoidable slight sedimentation or natural convection currents within the fluid. In that limit, the latter two effects probably also bias the measurement of the blob dispersion coefficient. It is noteworthy that the measured self-diffusivity coefficient of the particles obtained at large strain amplitudes are in good agreement with previous measurements done in continuously sheared particulate suspensions [19, 38]. Similarly, the enhancement of the dye diffusion coefficient at large applied strain amplitude is of the same order  $\approx 10^4$  than in a continuously sheared suspension [65]. This result could be useful in certain mixing applications where oscillatory shear might be easier to implement than continuous shear [55].

The molecular diffusion coefficient of rhodamine 6G in the present suspending liquid is small ( $D_0 \approx 10^{-13} \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ). In such condition of large Péclet number  $Pe = \dot{\gamma}d^2/D_0 = 10^6$  (with  $s_0 \simeq d$ ) where the effect of molecular diffusion is negligible relative to the fluctuations induced by the presence of the particles [18, 20], the measurement of the dye effective dispersion coefficient provides a good estimate of the fluid dispersion coefficient. Conversely to what was reported by Breedveld *et al.* [32], we find that the fluid dispersion coefficient is always slightly larger than that of the particles, see figure 3.4. One can explain this trend by the fact that the self-diffusivity coefficient of the particles only accounts for their transla-

tional diffusivity, while the fluid dispersion coefficient arises from the perturbations induced by both the translational and the rotational motion of the particles.

We performed Taylor's experiment in a suspension of non-Brownian particles to investigate how the loss of reversibility induced by the presence of the particles affects the dispersion of the blob of dye. By measuring both the particles and the blob of dye transverse effective diffusion coefficients, we found that the dispersion of the blob undergoes the same transition as the one observed by the particles [40]. At small strain amplitude, as in Taylor's experiment, the system is reversible and the blob thus recovers its initial shape after each cycle of shear. For a volume fraction  $\phi = 35\%$ , beyond a critical strain amplitude  $\gamma_c \approx 2$ , the system transits to a fluctuating state where reversibility is lost. As a result, the blob spreads very rapidly. The blob dispersion is found to be diffusive with an effective diffusive coefficient of the same order as the self-diffusivity coefficient of the particles.

\*  
\* \*

We would like to thank Paul Cervetti, Sady Noel and Stephane Martinez for building the experimental set-up. This work was supported by ANR JCJC SIMI 9 and by the Labex MEC ANR-11-LABX-0092 and A\*MIDEX ANR-11-IDEX-0001-02LABEX MEC.

---

## Dispersion et mélange dans une suspension de particules cisailée : effet des parois

---

Dans ce chapitre, l'objectif est d'étudier le transfert d'un scalaire au travers d'une suspension de particules cisailée de façon continue en se focalisant tout particulièrement sur le transfert en proche paroi. A partir de visualisations directes de l'évolution d'une couche de colorant initialement déposée sur la surface d'un des cylindres de la cellule de Couette, nous avons pu comprendre et modéliser le processus de transfert entre la paroi et le cœur de la suspension. Ces expériences nous ont permis de mettre en évidence le rôle important joué par la rotation des particules.

L'ensemble de ce travail est présenté sous la forme d'un article, "*Super-diffusion in sheared suspensions*", publié dans *Physics Of Fluids* (Souzy *et al.* 2015).

### 4.1 Présentation de l'article

Le problème du transfert ou du mélange d'un scalaire dans les suspensions cisillées a très peu été étudié depuis le travail fondateur d'Eckstein *et al.* en 1977 [20]. Comme nous l'avons vu dans l'introduction, cette question a généralement été abordée d'un point de vue "macroscopique" en traitant la suspension tel un milieu effectif ayant une diffusivité effective (Sohn & Chen [51], Shin & Lee [52], Wang & Keller [53], Wang *et al.* [54], Metzger *et al.* [19]). Ces études se sont principalement intéressées au flux d'un scalaire (masse ou chaleur) d'une paroi du système à une autre. Dans ce contexte, il est important de bien comprendre l'influence des parois. Cette question paraît d'autant plus sensible que, pour une suspension de particules, il est bien connu que les parois ont pour effet de frustrer l'agitation translationnelle des particules et donc le moteur de l'intensification des transferts. Pour décrire cet effet, Wang *et al.* [54] ont proposé que dans une couche limite typiquement d'une largeur de particule, le transfert ne peut s'effectuer que par diffusion moléculaire. Les techniques expérimentales présentées plus haut nous permettent de directement visualiser et caractériser le processus de transfert en proche paroi. J'ai ainsi développé une expérience dédiée, afin de mieux comprendre les mécanismes régissant le transfert dans cette région. L'idée est d'enduire un des cylindres de la cellule de Couette d'une fine couche de fluide 'dopé' en rhodamine et de caractériser sa dispersion progressive lorsque la suspension est soumise à un cisaillement. L'article qui suit présente les résultats de cette étude.

### 4.1.1 Résumé des résultats

-En effet, les particules au contact de la paroi ont une diffusion translationnelle nulle.

-Cela étant, le transfert du colorant de la paroi vers le bulk (cœur de la suspension) ne se fait pas uniquement par diffusion moléculaire car ces particules, sous l'effet du cisaillement, roulent sur la paroi. Ces particules s'enrobent alors de colorant et transportent ainsi par convection, à un flux constant, le colorant directement de la paroi vers le bulk. Ce mécanisme de "rolling-coating", révélé par nos visualisations directes, brise la couche limite diffusive et contribue significativement à la dispersion du scalaire.

- La mesure des fluctuations de vitesse de la phase fluide, nous a permis de déterminer un profil de dispersion effectif en proche paroi qui croît linéairement avec la distance à la paroi.

- En considérant la croissance linéaire du profil de dispersion et le flux constant de colorant assuré par le transport convectif induit par la rotation des particules, nous proposons une solution analytique pour l'évolution des profils de concentration en bon accord avec les mesures expérimentales.

### 4.1.2 Questions ouvertes

- Dans cette étude, le coefficient de dispersion effectif est construit à partir du tenseur de Reynolds tel que  $D(y) = \langle u'u' \rangle / \dot{\gamma}$ , où  $u'$  sont les fluctuations de vitesse de la phase fluide. Ce coefficient de dispersion effectif, que l'on utilise pour prédire l'évolution des profils de concentration, ne traduit donc que l'effet des fluctuations de vitesse induites par la présence des particules dans le fluide. Les résultats obtenus sont en bon accord avec les mesures car on s'est placé dans des conditions de grand nombre de Péclet,  $Pe = \dot{\gamma}d^2/D_0$  où les effets d'advection dominent largement l'effet de la diffusion moléculaire. Il serait intéressant d'étendre cette étude vers des nombres de Péclet plus faibles, par exemple en diminuant la taille des particules et/ou le taux de cisaillement, afin de mieux comprendre le couplage entre les effets de la diffusion moléculaire et des fluctuations de vitesse induites par les particules.

- Le profil de dispersion en proche paroi croît linéairement avec la distance à la paroi jusqu'à atteindre un plateau pour environ 2,5 diamètres de particules. Cela étant, il est connu que les effets de confinement (rapport taille de gap sur diamètre de particule) peuvent influencer la microstructure des suspensions [19, 67, 68] et par conséquent, le comportement diffusif des particules. Cet effet est particulièrement remarquable à forte fraction volumique où une structuration des particules en couches successives peut se développer sur l'intégralité du gap. Dans ce cas, le coefficient translationnel des particules décroît fortement. Il serait donc intéressant d'étudier l'influence du confinement et de la fraction volumique sur les profils de dispersion effectif du colorant.



## 4.2 Copie de l'article

### Super-diffusion in sheared suspensions

Mathieu Souzy,<sup>1</sup> Xiaolong Yin,<sup>2</sup> Emmanuel Villermaux,<sup>3</sup> Chérifa Abid,<sup>1</sup>  
and Bloen Metzger<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Aix-Marseille Université, IUSTI-CNRS UMR 7343, 13453 Marseille Cedex 13, France

<sup>2</sup>Petroleum Engineering, Colorado School of Mines, 80401 Colorado, USA

<sup>3</sup>Aix-Marseille Université, IRPHE-CNRS 7342, 13384 Marseille Cedex 13, France

(Received 18 December 2014; accepted 3 April 2015; published online 15 April 2015)

We investigate the dispersion of a layer of dye initially applied at the outer wall of a cylindrical Couette-cell into a sheared suspension of non-Brownian spherical particles. The process is directly visualized and quantified at the particle scale. A “rolling-coating” mechanism is found to convectively transport the dye at a constant rate directly from the wall towards the bulk. The fluid velocity fluctuations,  $u'$ , measured with particle image velocimetry, and the imposed shear-rate,  $\dot{\gamma}$ , are used to define a diffusion coefficient,  $D \propto \langle u'u' \rangle / \dot{\gamma}$ , which is found to increase linearly with the distance from the wall. A solution of the transport equation accounting for this inhomogeneous stirring field describes quantitatively the concentration profiles measured experimentally. It exhibits a super-diffusive character, a consequence of the increase of the stirring strength with distance from the wall. Movies are available with the online version of the paper. © 2015 AIP Publishing LLC. [<http://dx.doi.org/10.1063/1.4918613>]

Advection-diffusion coupling and the wide range of length-scales present in turbulent flows lead to the rapid mixing of a scalar field. Conversely, at low Reynolds number, the flow is laminar and mixing, which is then driven solely by molecular diffusion, is extremely slow. This is problematic in numerous situations; practical examples include glass manufacturing, molten polymers, heavy crude oils, industrial processing of food and domestic cooking, pharmaceutical and food industries and granular materials in civil engineering, to mention a few. How then, can one mix such fluids?

Given the molecular diffusion is extremely slow, mixing enhancement requires conferring to the flow as much complexity and disorder as possible. In the absence of spontaneous inertial instabilities within the fluid such as those occurring in turbulent flows, the only way to complexify the flow is through the boundaries. An archetypal example is having the fluid flow through a porous material: the fixed but tortuous boundaries disrupt the fluid flow which results in a mixing enhancement. [3, 69] Oscillating the fluid flow is also known to enhance mixing (Taylor-Aris [70, 71]). This effect was found to be particularly important in porous materials such as bones. Biologists have shown that through physical activity, periodic load-induced fluid flow in bones is critical for nutrient transport and bone metabolism. [72, 73]

Another approach consists in moving the boundaries in sequential ways or to carve them in order to force the path lines of the fluid to be chaotic, e.g. in the blinking vortices configuration [74] or in chaotic mixers for micro-channels [75, 76].

In the present study, we investigate how shearing suspensions of particles enhance the dispersion of a scalar field, prelude to its mixing. The latter is faster when the former is made efficient. Particles, i.e solid inclusions, behave as moving boundaries. Their permanent re-organisation within the fluid spontaneously promote mixing even under low Reynolds number conditions. Under flow, particles experience frequent collisions with one another and are thus deviated from their laminar streamlines. This phenomenon called “shear-induced dispersion” has been widely studied in recent years [6, 7, 20, 31, 38]. The particle diffusive motion  $D_p \propto \dot{\gamma} d^2$  where  $\dot{\gamma}$  and  $d$  denote the imposed shear rate and the particle diameter respectively [18]. This scaling is expected since the only time scale in the system is the

inverse of the shear rate and the relevant length scale, i.e. the characteristic length scale of the fluid velocity disturbances is given by the particle size. Particles in essence can be thought of as many “stirrers” : they confer to the flow a stochastic component of advection that produces an efficient mixing. Recent experimental results [19] demonstrated that the transfer of heat across a suspension of particles is substantially ( $> 200\%$ ) increased when the suspension is sheared. Other studies [53,54] investigated the transfer of mass across a sheared suspension of particles using an electrochemical method to measure the macroscopic rate of augmented transport of solutes. These studies are very promising in terms of applications. However, from a fundamental point of view, many questions remain open. Specifically, there are to our knowledge, no measurements of the mixing process performed at the particle scale. Yet this information is crucial to understand the mechanisms at the origin of the transfer intensification. This point constitutes the motivation of the present study. Following this aim, we developed an original experimental set-up that allows direct visualization of the dispersion process of a layer of dye in a sheared suspension of non-Brownian particles.

The experimental set-up is sketched in Figure 4.1. The inner cylinder that has a radius of 5 cm and a height of 12 cm is driven by a precision rotating stage (M-0.61.PD from PI piezo-nano positioning) with high angular resolution ( $3 \times 10^{-5}$  rad). The transparent PMMA outer cylinder is stationary, and the gap between the two cylinders is  $L_{gap} = 12$  mm. The temperature of the whole set-up is controllable ( $\pm 0.05^\circ\text{C}$ ) as the Couette cell is embedded in a square water-bath jacket connected to a cryo-thermostat. More details about the set-up are provided in Metzger *et al.* [19].

The fluid is a Newtonian mixture of Triton X-100, zinc chloride and water. Its viscosity is  $\eta = 3$  Pa.s so that inertial effects can be neglected (the Reynolds number  $Re = 5.10^{-3}$ ). The composition of the fluid is also chosen to match both the density of the particles ( $\rho_f = \rho_{part} = 1.19$  g.cm $^{-3}$ ) to avoid sedimentation, and their index of refraction to obtain an optically transparent suspension [56]. A small amount of hydrochloric acid ( $\approx 0.05$  wt%) is added to the solution to prevent the formation of zinc hypochlorite precipitate, significantly improving the transparency of the mixture. Finally, the temperature of the water-bath is adjusted in order to finely tune index-matching between the fluid and the particles (best index-matching was obtained for  $T \approx 18.5^\circ\text{C}$ ). We use spherical PMMA beads from Engineering Laboratories Inc. with a diameter  $d = 2$   $\mu\text{m}$ . These particles were specially chosen for their high surface quality and good transparency. All experiments are performed at a volume fraction  $\phi = 35\%$ .

As presented in Figure 4.1, the rhodamine fluoresces under illumination provided by a thin horizontal laser sheet. Images are acquired from the top using a high resolution camera (Bastler Scout) and a high-pass filter ( $\lambda > 550$  nm) is used to eliminate direct light reflexions due to the imperfect index-matching. The protocol is the following : a thin layer of fluid doped with rhodamine 6G ( $C_{rhod} = 9 \times 10^{-7}$  g.mL $^{-1}$ ) is homogeneously applied on the outer cylinder using a brush. Then, the gap is carefully loaded with the suspension without disturbing the rhodamine layer applied on the outer cylinder. After waiting 30 minutes to reach thermal equilibrium (thus optimal index-matching), the suspension is sheared at a fixed shear-rate,  $\dot{\gamma} = 0.5$  s $^{-1}$ . The evolution of the mean dye concentration profiles across the gap is obtained by averaging the light intensity re-emitted by the rhodamine 6G along the flow direction. In total, four experiments were performed for which the whole protocol was repeated entirely.

We performed Particle Image Velocimetry (PIV) to measure the velocity fluctuations of the fluid phase. The fluid was seeded with passive fluorescent tracers (MF-Rhodamine B-particles 3,23  $\mu\text{m}$ ). Images were acquired into burst of five images separated by a strain interval  $\gamma_0 = 0.02$ . A total of 200 bursts, separated by a strain interval  $\gamma \approx 10$ , were acquired in order to obtain averages over a large ensemble of statistically uncorrelated configurations. Note that we do not report the velocity fluctuations near the inner (mobile) since it is very difficult to measure velocity fluctuations in regions of the flow where the mean velocity is large.

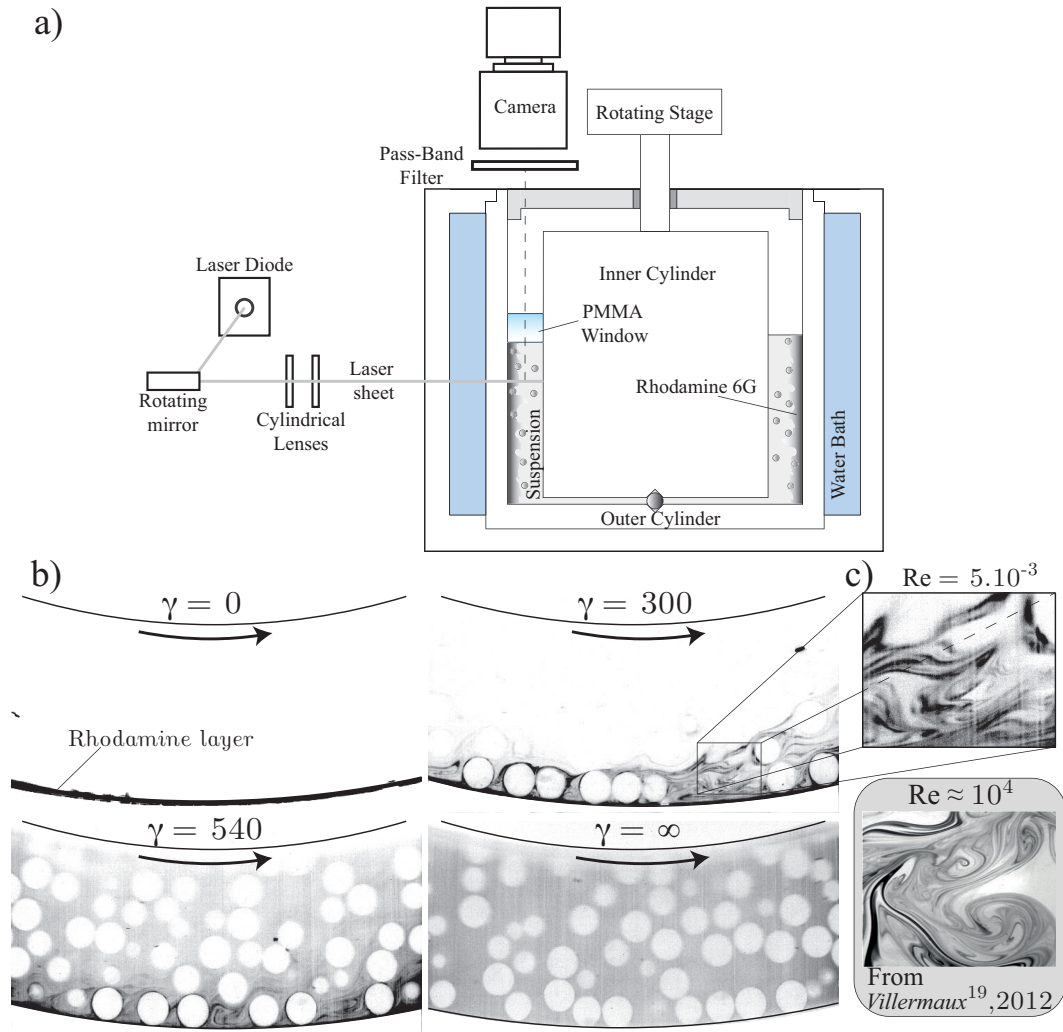


FIGURE 4.1 – a) Sketch of the experimental set-up. b) Successive snapshots of the suspension. Initially, a thin layer of rhodamine 6G (in black) is located on the outer cylinder. When the suspension is sheared, the dye progressively spreads across the cell-gap until homogeneity is reached. Particles appear as white discs. See Chapitre4-Movie1 in the supplementary material [77] for detailed evolution of the layer of dye. c) Close-up view of the flow pattern. Note that this mixing pattern is reminiscent to those observed in turbulent flows, [78] see bottom picture.

When shearing the suspension, the rhodamine layer initially applied on the outer cylinder progressively spreads into the gap until homogeneity is reached, as seen in Figure 4.1.b. Two qualitative yet important observations can be made. First, if no particles had been introduced into the fluid, thus having a dispersion process solely driven by molecular diffusion ( $D_0 \approx 10^{-13} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ , see Culberston *et al.* [60]), the time scale to reach homogeneity,  $t = L_{gap}^2 / D_0$ , would have been of the order of 30 years. Here, in the sheared suspension, homogeneity is reached after 30 minutes. The transfer enhancement is thus extremely large. We show in the sequel that the reason is that the dye dispersion process is super-diffusive but, if from a naive comparison of the timescales above one would define an effective coefficient, it would be such that  $D_{eff} / D_0 \approx 10000$ . Second, the patterns observed in the mixing layer, shown on Figure 4.1.c, strikingly remind those observed in turbulent mixing. For comparison, a

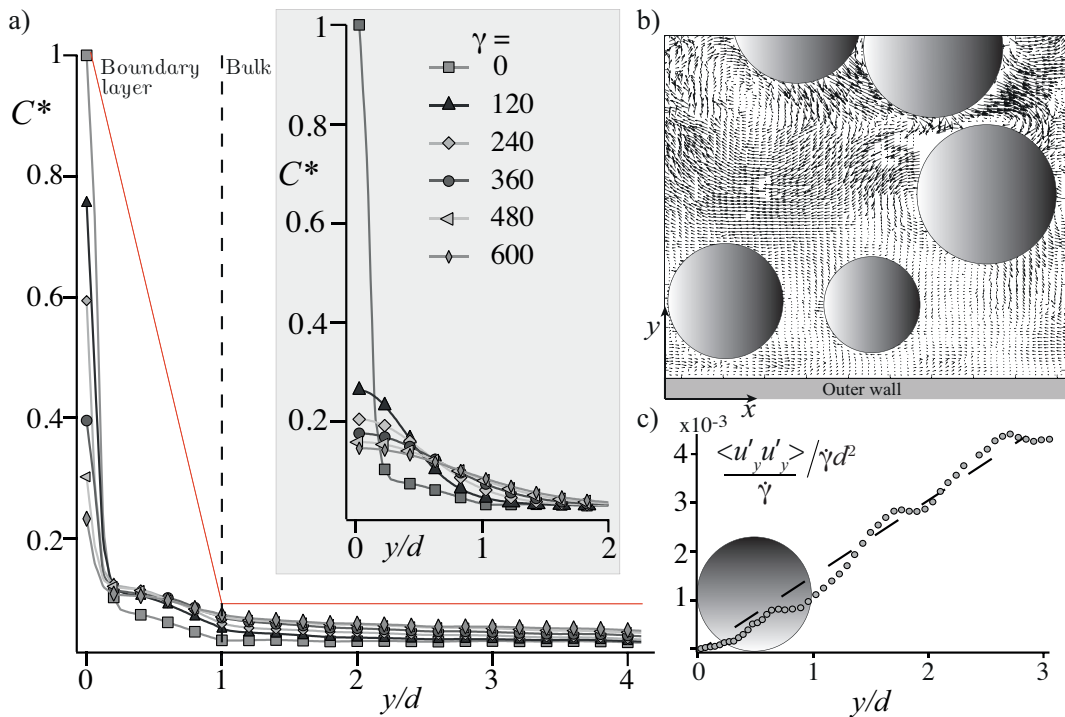


FIGURE 4.2 – a) Concentration profiles versus distance from the wall,  $y/d$  at successive strains  $\gamma = \dot{\gamma}t$ . Inset : Concentration profiles one would obtain for a homogenous diffusion coefficient equal to  $D_{eff}$ . b) Example of velocity-fluctuations field (the affine part of the flow was subtracted). See Chapitre4-Movie2 in the supplementary material [77] for raw images of the flowing suspension. c) Dimensionless diffusion profile  $\frac{\langle u'_y u'_y \rangle}{\dot{\gamma} d^2}$ , versus distance from the wall,  $y/d$ .

picture from earlier work [78] of a blob of dye stirred in a turbulent flow at a Reynolds number  $Re \approx 10^4$  is shown on Figure 4.1.c. In the suspension, even though the Reynolds number is small ( $Re = 5 \times 10^{-3}$ ), the fluid velocity disturbances generated by the particles contribute to accelerate the dispersion process.

The dye concentration profiles as a function of the distance from the wall measured at successive strains,  $\gamma = \dot{\gamma}t$ , are shown on Figure 4.2.a. Their overall shape is interestingly analogous to the temperature profiles measured in turbulent Rayleigh-Benard convection. [79] In the latter configuration, the temperature is very homogeneous in the bulk thanks to the efficient mixing induced by the numerous thermal eddies. Conversely, strong temperature gradients are observed near the walls, in the thermal boundary layers, where heat transfer only occurs through thermal diffusion. Our system shows similar trends. Concentration profiles are flat in the bulk, suggesting an efficient dispersion mechanism is at play in that region and a strong concentration gradient is observed close to the wall where the transfer of dye appears to be much slower. This is consistent with the scenario proposed by Wang *et al.* [54] that the particle shear-induced diffusivity drives the mixing process : in the bulk, after each collision, particles are free to translate in any direction. Conversely, particles located against the wall are sterically frustrated : when approaching the walls, their translational diffusivity must vanish. For comparison, the inset of Figure 4.2.a shows the concentration profiles one would obtain for a homogeneous diffusion coefficient equal to  $D_{eff}$ . In that case, the concentration at the wall decays much faster.

To investigate how the dye is transported from the wall towards the bulk, we performed

PIV measurement of the fluid velocity field. Owing to the extremely small value of the molecular diffusion coefficient  $D_0$ , this approach seems reasonable since the process we are investigating is likely to be a dispersion problem dominated by advection i.e. the stirring motions caused by the particles themselves. A typical velocity fluctuation field is illustrated in Figure 4.2.b. Dimensionally, these velocity fluctuations can be used to build a diffusion coefficient,  $D(y) \propto \langle u'_y u'_y \rangle / \dot{\gamma}$ , quantifying the magnitude of the velocity disturbances induced by the particles. While existing models [80] proposed that the diffusion coefficient should increase as  $y^4$ , our experimental observations suggest a linear increase with the distance from the wall, namely  $D(y) = Uy$ , with  $U$  a constant velocity (Figure 4.2.c). Note that for  $y/d < 1$ , a significant amount of fluctuations is present in the fluid, although in that region, as we mentioned before, the particle translational diffusivity must be zero. As can be seen in Chapitre4-Movie3 in the supplementary material [77], particles located against the wall rotate within the shear flow; this rotation induces disturbances within the fluid.

This close examination of the boundary layer also reveals an unexpected transport-enhancing mechanism : as shown on Figure 4.3.a, by rolling against the wall, particles get coated with a thin layer of dye. The particle rotation thus contributes to a convective transport of the rhodamine located on the wall directly towards the bulk. This mechanism is crucial since it breaks the initially expected diffusive boundary layer. [54] Furthermore, when computing the total amount of rhodamine present in the bulk,  $m = \int_d^{3d} C(y, t) dy$ , we find this quantity increases linearly with time or equivalently with strain,  $m \propto t$ , see Figure 4.3.b. This can easily be explained assuming the initial layer of rhodamine applied on the outer wall constitute an infinite reservoir of dye. Since the particle rotation rate is fixed by the shear rate and calling  $\delta$  the thickness of the rhodamine layer coating the particles, we expect this "rolling-coating" mechanism to produce a constant mass flux,  $J = \delta \dot{\gamma}$ , of rhodamine towards the bulk. This scenario indeed leads to a linear growth of the total amount of rhodamine present in the bulk,  $m = \int_0^t J dt' = \delta \dot{\gamma} t$ . Note that, being driven by the rotation of the particles in the layer contacting the wall, the mass flux is *de facto* identical at  $y = 0$  and  $y = d$ .

Thus, considering the linear increase of the diffusion coefficient with the distance from the wall, the transport equation for the dye mean concentration field  $C(y, t)$  becomes

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial y} \left( D(y) \frac{\partial C}{\partial y} \right), \\ D(y) &= Uy. \end{aligned} \quad (4.1)$$

and can be solved assuming a constant mass flux as a boundary condition at  $y = 0$ . The solution is given by an incomplete gamma function

$$C(y, t) = \frac{J}{U} \Gamma \left( 0, \frac{y}{Ut} \right) = \frac{J}{U} \int_{\frac{y}{Ut}}^{\infty} \frac{e^{-x}}{x} dx. \quad (4.2)$$

This solution closely matches the experimental concentration profiles recorded in the bulk, when the parameter  $J$  is adjusted such that  $\int_d^{3d} \frac{J}{U} \Gamma \left( 0, \frac{y}{Ut} \right) dy = m$ , ensuring that the amount of dye in the range  $[d - 3d]$  coincides with the experimental concentration profiles, see Figure 4.3.b. Note that the integral of the model should not grow linearly over that restricted range (only the total mass should), yet a linear assumption is reasonable. This solution also demonstrates, not surprisingly considering the non-constancy of  $D(y)$  with  $y$ , that the transport is enhanced, the dye being removed from the wall all the more rapidly that it is distant from it. Indeed, the penetration distance (typical width of the concentration profile) of the dye is  $\int y C(y, t) dy \sim mUt = JUt^2$ , a clearly super-diffusive dispersion law. This shows the strong effect of the presence of the wall, and of the particles, on the overall transfer process. The parameter  $U$  is found to be equal to  $2.12 \times 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$  which leads to  $D(y) / \dot{\gamma} d^2 = 2.12 \times 10^{-3} y/d$ . At distances from the wall around 3 to 4 beads diameters, the diffusion coefficient  $D(3d) \approx 10^{-2} \dot{\gamma} d^2$  which matches earlier bulk measurements [19,38] of the

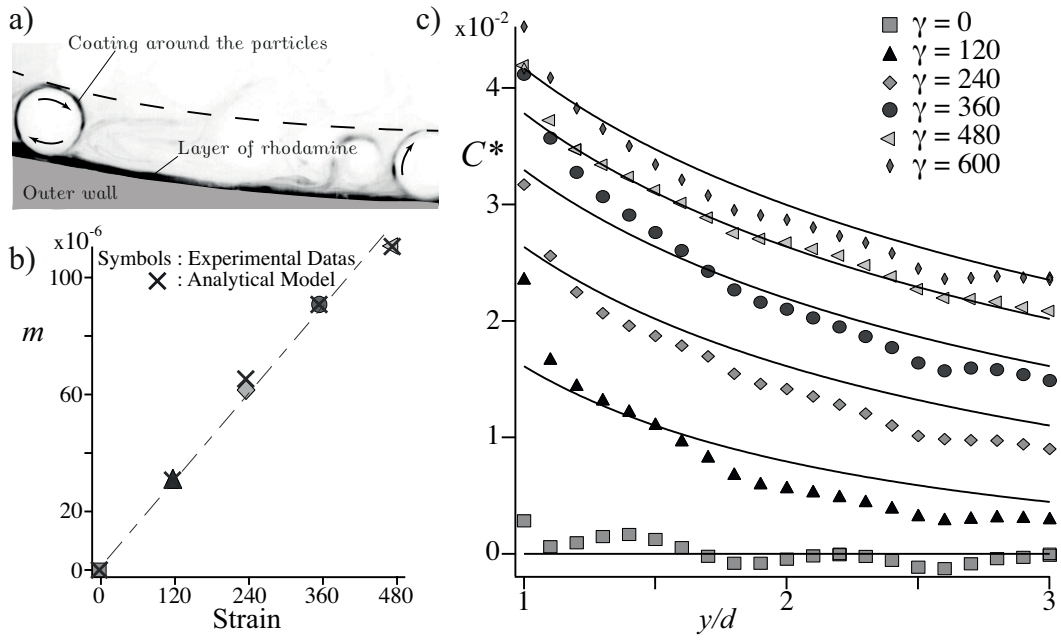


FIGURE 4.3 – a) Close view of the “rolling-coating” mechanism. See also Chapitre4-Movie3 in the supplementary material [77]. b)  $m = \int_d^{3d} C(y, \gamma) dy$  for the experimental profile and the analytical solution, for successive strains. c) Comparison between the experimentally measured concentration profiles (markers) and the analytical solution (full line, see Equation 4.2), versus distance from the wall,  $y/d$ .

particle diffusion coefficient at this concentration. This also leads to  $D(y) = 1.30 \langle u'_y u'_y \rangle / \dot{\gamma}$  suggesting the dimensional approach based on the fluid velocity fluctuations provides a correct estimate of the particles diffusion coefficient.

Sheared suspensions happen to be a system where an efficient dispersion spontaneously occurs even under low Reynolds numbers conditions. Using planar laser-induced fluorescence, we directly visualized the spread of a layer of rhodamine initially applied on the outer wall of a cylindrical Couette-cell. For the flow conditions studied here ( $Re = 5.10^{-3}$  and  $Pe = \dot{\gamma} d^2 / D_0 = 10^7$ ), the dispersion of the dye has been shown to be super-diffusive close to the wall, leading to a transport four orders of magnitude more efficient than its molecular expectation in the fluid at rest. The dispersion coefficient in the bulk is of the same order of magnitude as the particle diffusion coefficient measured in earlier works [19, 38]. The shape of the mean concentration profiles reflects an increase of the stirring intensity with distance to the wall, the sheared particles responsible for these motions being sterically damped at the wall. High-resolution PIV measurements of the fluid velocity disturbances generated by the particles have shown that their diffusion coefficient increases approximately linearly with the distance from the wall. The solution of the transport equation with a linear variation of the diffusion coefficient in space and a constant mass flux at the wall boundary condition provided concentration profiles in good agreement with the ones measured experimentally. However, mass transfer at the wall not only occurs through molecular diffusion. Direct visualization of the mixing process allowed us to identify a “rolling-coating” mechanism : particles rotate against the wall and get coated with a thin layer of dye. The particles convect, at a constant rate, the dye from the wall directly towards the bulk (see Chapitre4-Movie3 in the supplementary material [77]) breaking the diffusive boundary layer. In future experiments, we plan to vary the particle size and shear-rate to explore a large range of Péclet number, and deeper range of distances from the wall.

\*  
\* \*

We would like to thank Paul Cervetti, Sady Noel and Stephane Martinez for building the experimental set-up. This work was supported by ANR JCJC SIMI 9 and by the Labex MEC ANR-11-LABX-0092 and A\*MIDEX ANR-11-IDEX-0001-02LABEX MEC.





---

## Cinématique de déformation dans une suspension cisailée : conséquences pour le mélange

---

Dans les études présentées dans les Chapitres 3 et 4, j'ai traité la question du transfert en caractérisant le processus par un coefficient de dispersion effectif. Cette méthode offre la possibilité de décrire le processus de dispersion du colorant dans son ensemble et permet de rendre compte de l'intensification des transferts qui a lieu dans les suspensions de particules soumises à un cisaillement. Dans le présent Chapitre, nous allons voir que l'on peut en fait donner une description bien plus fine et surtout plus quantitative des mécanismes à l'origine de cette intensification.

Nous nous placerons cette fois dans le bulk de la suspension (loin des parois) et la suspension sera soumise à un cisaillement continu. Nous aborderons le problème sous un angle différent en étudiant le processus d'homogénéisation d'un scalaire. Cette fois, les objectifs sont de comprendre comment un système initialement ségrégué (une goutte de colorant) s'homogénéise, et de répondre à une question particulièrement importante qui est de prédire la durée de ce processus. Pour cela, l'idée est de désimbriquer l'effet de l'advection et de la diffusion moléculaire dont le couplage détermine le processus de mélange. Grâce à l'approche dite 'lamellaire' [81], on déterminera dans un premier temps les lois d'étirements qui quantifient la cinématique de déformation du système. On pourra ensuite y coupler l'effet de la diffusion moléculaire afin de prédire la durée caractéristique du processus de mélange.

### 5.1 L'approche 'lamellaire' : désimbriquer l'effet de l'advection et de la diffusion moléculaire

Tout processus de mélange est gouverné par le couplage entre l'effet de l'advection et celui de la diffusion moléculaire. Afin de comprendre le rôle respectif de ces deux effets, considérons une goutte de colorant immergée dans un écoulement. Le champ d'advection, en présence de gradients de vitesse, a tendance à étirer la goutte de colorant qui prend alors la forme d'un filament, aussi appelé 'lamelle', cf. Figure 5.1 (a). A mesure que la longueur  $l(t)$  de la goutte s'allonge, sa dimension transverse,  $s(t)$ , décroît en proportion afin de satisfaire à la conservation de la masse qui, dans un problème à 2 dimensions, s'écrit  $s_0 l_0 = s(t)l(t)$ , où  $s_0$  et  $l_0$  sont respectivement les dimensions transverse et longitudinale de la goutte initiale. Pour caractériser l'effet du champ d'advection sur la goutte de colorant, on peut simplement définir un taux de compression  $-\dot{s}/s$  qui indique à quelle vitesse la dimension transverse du

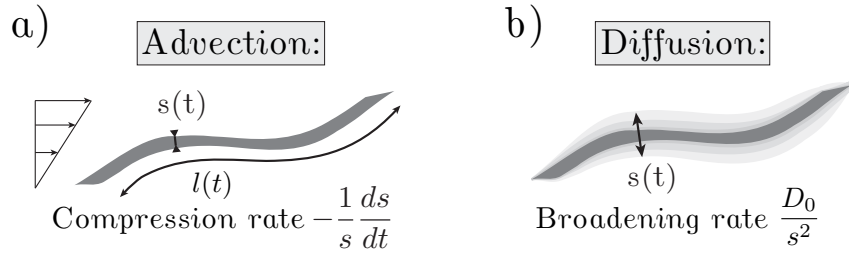


FIGURE 5.1 – Schéma illustrant l'effet de a) l'advection, b) la diffusion moléculaire.

filament décroît du fait de l'écoulement imposé. Le champ d'advection étire et par conséquent affine la dimension transverse du filament. Comme illustré sur la Figure 5.1 (b), la diffusion moléculaire a un effet opposé. Elle tend en effet à élargir le filament en étalant les profils de concentration. On peut de façon similaire au cas de l'advection, caractériser l'effet de la diffusion moléculaire en définissant le taux d'élargissement  $D_0/s^2$ , où  $D_0$  est le coefficient de diffusion moléculaire du colorant. L'instant pour lequel les deux taux définis précédemment sont égaux fixe naturellement une échelle de temps que l'on appelle temps de mélange (ou temps de Batchelor [82]). A cet instant, la diffusion moléculaire élargit le filament aussi vite qu'il ne s'affine sous l'effet du champ d'advection : les niveaux de concentration du scalaire commencent alors significativement à décroître. A partir de cet instant, la distribution des niveaux de concentration évolue de façon conséquente alors que le scalaire s'homogénéise dans le système.

Le temps de mélange est une grandeur très importante qui caractérise la durée du processus de mélange. On voit, par l'approche que l'on vient de présenter, que sa détermination passe par la connaissance des lois d'étirement, *i.e.* par la connaissance de l'évolution temporelle de  $l(t)$ . Traitons par exemple, le cas simple d'une goutte de colorant cisillée dans un fluide pur (sans particules).

### 5.1.1 Temps de mélange pour un cisaillement simple

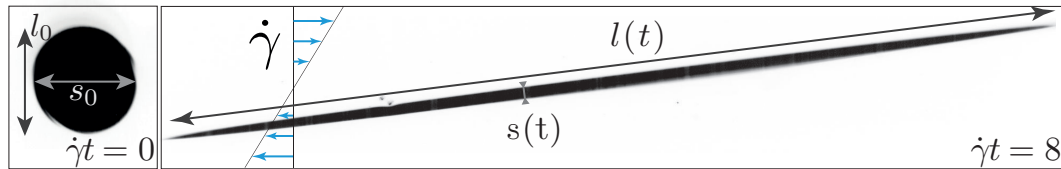


FIGURE 5.2 – Goutte de colorant étirée dans un fluide visqueux (sans particules) continuellement cisillé.

Dans le cas d'une goutte de colorant cisillée dans un fluide pur, cf. Figure 5.2, la goutte, de longueur initiale  $l_0$  et de largeur  $s_0$ , s'étire sous l'effet du cisaillement tel que sa longueur  $l(t)$  croît comme

$$l(t)^2 = l_0^2 + (l_0 \dot{\gamma} t)^2 \iff l(t) = l_0 \sqrt{1 + (\dot{\gamma} t)^2}. \quad (5.1)$$

Aux temps longs, la longueur de la goutte croît donc linéairement avec le temps  $l(t) \sim l_0 \dot{\gamma} t$ . Dans le cas présent d'un cisaillement homogène, on peut considérer que la configuration est 2D et par conséquent l'équation de conservation de la masse s'écrit

$$s_0 l_0 = s(t) l(t), \quad (5.2)$$

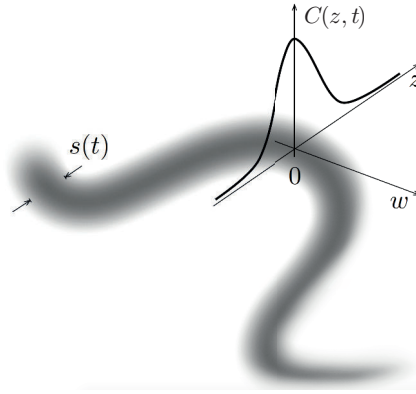


FIGURE 5.3 – Schéma d'un filament et profil de concentration gaussien  $C(z, t)$  associé dans le référentiel local, extrait de Villermaux [69].

d'où, en combinant les équations (5.1) et (5.2), on obtient que la dimension transverse de la goutte décroît de façon inversement proportionnelle au temps

$$s(t) \sim \frac{s_0}{\dot{\gamma}t}. \quad (5.3)$$

Connaissant l'évolution temporelle de la dimension transverse de la goutte, on peut à présent estimer le temps de mélange. Il est atteint, comme nous l'avons défini plus haut, lorsque le taux de compression  $\dot{s}/s$  du filament est égal à son taux d'élargissement diffusif  $D_0/s^2$  :

$$\left| \frac{\dot{s}(t_{\text{mix}})}{s(t_{\text{mix}})} \right| = \frac{D_0}{s(t_{\text{mix}})^2} \iff \frac{1}{t_{\text{mix}}} = \frac{D_0(\dot{\gamma}t_{\text{mix}})^2}{s_0^2} \iff t_{\text{mix}} = \frac{Pe^{1/3}}{\dot{\gamma}}. \quad (5.4)$$

Cet exemple simple montre comment la connaissance des lois d'étirement et du coefficient de diffusion moléculaire, permet d'estimer le temps de mélange. Cette approche efficace donne bien sûr des résultats compatibles avec la résolution analytique directe du problème. En effet, dans la présente configuration, la solution de l'équation d'advection-diffusion du champ de concentration  $C$ ,

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{u} \nabla C = D \nabla^2 C, \quad (5.5)$$

peut être obtenue analytiquement en effectuant un changement de variables adapté. Ce changement de variable permet de transformer cette équation d'advection-diffusion en une équation de diffusion simple dont la solution est connue. C'est un changement de variable générique, qui a largement été employé dans une vaste gamme de domaines comme la turbulence (Batchelor [82], Villermaux & Duplat [83]), la combustion (Marble [84]), les procédés industriels (Ranz [81], Villermaux & Rehab [85], Meunier & Villermaux 2003 [86]), ou la géophysique (Le Borgne *et al.* [3]). Pour transformer l'équation d'advection-diffusion en une équation de diffusion simple, on se place dans le référentiel mobile  $\{w, z\}$  dont les axes sont alignés avec les directions d'étirement et de compression maximales du filament [69] (cf. Figure 5.3), avec  $\vec{u} = \{-(\dot{s}/s)w, (\dot{s}/s)z\}$ . A l'aide de ce changement de variable et en faisant l'hypothèse que les gradients de concentration le long du filament étiré  $\partial C/\partial w$  sont négligeables devant les gradients de concentration dans la direction de compression  $\partial C/\partial z$  [87], l'équation 5.5 devient

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\dot{s}}{s}z \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2}. \quad (5.6)$$

L'hypothèse de faible gradient le long des directions d'étirement est valide dans la plupart des situations, lorsque l'écoulement tend à former une topologie constituée de filaments (ou

de feuillets en 3D) [2, 88]. Pour simplifier davantage cette équation, il est intéressant de compter les distances transverses en unité de la largeur du filament  $s(t)$  et le temps, en unité du temps courant de diffusion  $s(t)^2/D_0$ . Pour cela, on écrit

$$\xi = \frac{z}{s(t)} \text{ et } \tau = \int_0^t \frac{D_0}{s(t')^2} dt'. \quad (5.7)$$

L'équation 5.6 devient alors l'équation de diffusion

$$\frac{\partial C}{\partial \tau} = D \frac{\partial^2 C}{\partial \xi^2}, \quad (5.8)$$

dont la solution est connue pour un profil de concentration initial 'flat-top' (aussi appelé 'top-hat') :

$$C(\xi, \tau) = \frac{C_0}{2} [\operatorname{erf}(\frac{\xi + 1/2}{2\sqrt{\tau}}) - \operatorname{erf}(\frac{\xi - 1/2}{2\sqrt{\tau}})]. \quad (5.9)$$

La concentration maximale au centre du filament ( $\xi = 0$ ) est alors

$$C(0, t) = C_0 \operatorname{erf}(\frac{1}{4\sqrt{\tau}}), \quad (5.10)$$

avec  $C_0$  la concentration initiale. Le temps de mélange  $t_{\text{mix}}$  est atteint lorsque la concentration maximale diminue de façon significative, *i.e.* pour  $1/4\sqrt{\tau} = O(1)$  donc pour  $\tau = O(1)$ . Dans le cas d'un cisaillement simple, on a

$$\tau = \int_0^t \frac{D_0}{s(t')^2} dt' = \frac{D_0}{s_0^2} \int_0^t (1 + \dot{\gamma}^2 t'^2) dt' = \frac{D_0}{s_0^2} (t + \frac{\dot{\gamma}^2 t^3}{3}). \quad (5.11)$$

L'expression se simplifie aux temps longs en  $\tau \sim \dot{\gamma}^2 D_0 t^3 / (3s_0^2)$ , d'où l'on déduit :

$$\tau = O(1) \iff t_{\text{mix}} = \frac{3}{\dot{\gamma}} (\frac{\dot{\gamma} s_0^2}{D_0})^{1/3} = 3 \frac{Pe^{1/3}}{\dot{\gamma}} \quad (5.12)$$

On retrouve ainsi la prédiction du temps de mélange obtenue précédemment. La différence de pré-facteur résulte du fait que, dans la seconde méthode, l'ensemble de l'historique de l'étirement est pris en compte.

### 5.1.2 Temps de mélange pour d'autres types d'écoulements

Les lois d'étirement peuvent être directement obtenues de façon analytique pour un certain nombre d'écoulements simples. C'est le cas par exemple de l'écoulement 2D autour d'un vortex ponctuel, qui génère un étirement linéaire des lignes matérielles (Meunier & Villermaux [86]). Un autre exemple très connu est l'écoulement qui consiste en une succession d'étirements et de repliements, aussi appelée 'Transformation du Boulanger' (Batchelor [89], Ottino [2]) qui génèrent des lois d'étirement exponentielles, de la même manière que les écoulements élongationnels. Dans tous ces cas, la connaissance des lois d'étirement permet d'estimer, comme on l'a montré plus haut, le temps de Batchelor associé au processus de mélange. Le Tableau 5.1 référence différents types de lois d'étirement, les temps de mélange associés ainsi qu'une liste d'écoulements donnant lieu à ces étirements.

Lois d'étirement	Temps de mélange	Type d'écoulement (liste non-exhaustive)
$l(t) \sim l_0 \dot{\gamma} t$	$\dot{\gamma}^{-1} Pe^{1/3}$	Cisaillement simple, vortex
$l(t) \sim l_0 (\dot{\gamma} t)^\alpha$	$\dot{\gamma}^{-1} Pe^{1/(2\alpha+1)}$	Étirement persistant, jets, poreux
$l(t) \sim l_0 e^{\dot{\gamma} t}$	$(2\dot{\gamma})^{-1} \ln Pe$	Élongationnel, turbulence, 'sine-flow'

TABLE 5.1 – Différentes lois d'étirement, temps de mélange associés, et écoulements types qui donnent lieu à ces lois d'étirement.

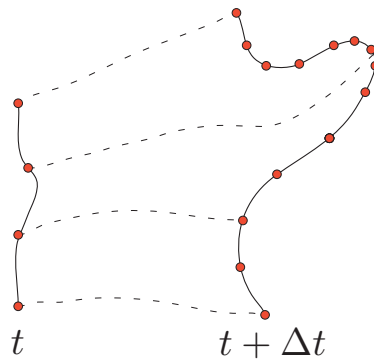


FIGURE 5.4 – Schéma illustrant la *Diffusive Strip Method*. Une ligne matérielle, discrétisée par un certain nombre de traceurs, est advectée sur le champ de vitesses. Le nombre de traceurs constituant la ligne est progressivement augmenté afin de correctement décrire son historique d'étirement.

## 5.2 Diffusive Strip Method

Il arrive bien souvent que le champ de vitesses soit connu analytiquement mais que la détermination analytique des lois d'étirement soit néanmoins impossible. Dans cette situation, Meunier & Villermaux ont proposé une méthode astucieuse, appelée la *Diffusive Strip Method* [63], qui permet d'obtenir les lois d'étirement de façon numérique. Cette méthode permet de reconstruire numériquement, à partir du champ de vitesses analytique, l'historique d'étirement de lignes matérielles de la phase fluide. La méthode consiste à discrétiser une ligne matérielle de la phase fluide par un certain nombre de traceurs passifs. Ces traceurs sont ensuite advectés numériquement à partir du champ de vitesses. La discrétisation de la ligne est raffinée au cours du temps, en augmentant le nombre de traceurs composant cette ligne, à chaque fois que sa longueur ou que sa courbure augmente, cf. Figure 5.4. L'évolution temporelle de la ligne matérielle est ainsi reconstruite et on peut, de cette manière, déterminer les lois d'étirement caractérisant l'écoulement considéré.

La *Diffusive Strip Method* permet également d'aller plus loin, en offrant la possibilité de reconstruire à *posteriori* le champ de concentration sur une matrice 2D autour d'un filament qui a été advecté. Cette seconde étape numérique se fait après avoir résolu la cinématique de déformation du filament, et permet de fixer à *posteriori* la largeur initiale  $s_0$  du filament et le coefficient de diffusion moléculaire  $D_0$ . La force de la méthode provient de sa capacité à reconstruire numériquement le champ de concentration quelque soit la valeur du coefficient de diffusion moléculaire, par opposition aux méthodes Eulériennes résolvant numériquement l'équation d'advection-diffusion sur un réseau avec une taille de maille qui limite la gamme de valeur que peut prendre  $D_0$ . Notons que dans le cadre de cette thèse, la *Diffusive Strip Method* n'a été utilisée que pour reconstituer l'historique de l'étirement de lignes matérielles, et pas pour la reconstruction de champs de concentration.

La *Diffusive Strip Method* a été validée expérimentalement en traitant le cas d'un vortex ponctuel (Meunier & Villermaux [86]), pour lequel la solution analytique du champ de vitesses et des lois d'étirement sont connues, cf. Figure 5.5 (a et b). Les mêmes auteurs ont aussi ensuite employé cette méthode afin de déterminer les lois d'étirement dans un écoulement de *sine-flow*, *i.e.* une succession d'écoulements alternés de cisaillement horizontaux et verticaux aléatoirement déphasés, cf. Figure 5.5 (c), qui donne lieu à des étirements exponentiels.

Le Borgne *et al.* [3] ont employé cette méthode afin de déterminer les lois d'étirement dans un milieu poreux, en utilisant une forme analytique du champ d'écoulement. Ils ont simulé l'élongation d'une ligne matérielle portée par un écoulement bouchon (*plug-flow*) au

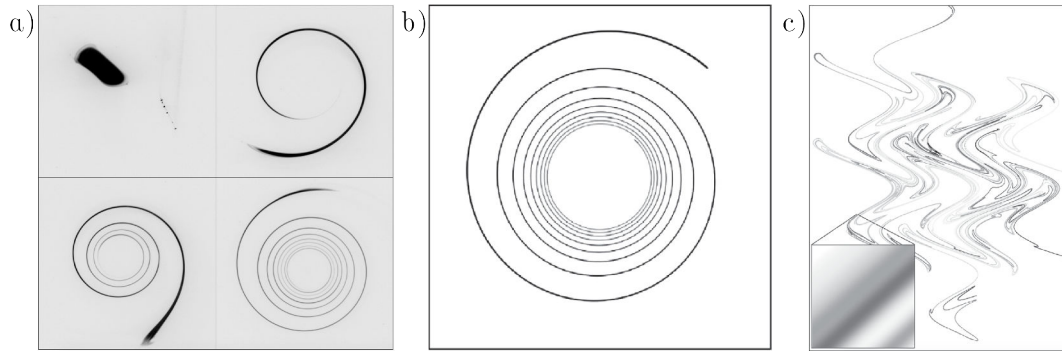


FIGURE 5.5 – Étude de l'étirement d'une goutte de colorant dans un écoulement généré par un vortex a) Expériences, extrait de Meunier & Villermaux [86], b) Reconstruction grâce à la *Diffusive Strip Method*, Meunier & Villermaux [63]. c) Reconstruction par *Diffusive Strip Method* d'une ligne matérielle dans un écoulement de type *sine-flow*, extrait de Meunier & Villermaux [63].

travers d'un milieu poreux pour lequel le champ de vitesses est la solution de l'équation de Darcy avec une distribution de conductivité hydraulique lognormale. Ce modèle pour le champ de vitesses dans un milieu poreux est une solution générique largement employée (Fiori & Dagan [90], Le Borgne *et al.* [91]), où l'hétérogénéité est caractérisée par la variance du champ de perméabilité. Ils ont ainsi obtenu des lois d'étirement en lois de puissance, avec un exposant qui dépend de la perméabilité du milieu simulé.

Etre capable de déterminer les lois d'étirement est une étape importante dans la compréhension du processus de mélange. Pour répondre aux objectifs fixés dans cette thèse, nous avons d'abord tenté de caractériser ces lois dans les suspensions cisillées à partir de techniques d'analyse d'image. Comme nous l'avons présenté à la fin du Chapitre 2, l'idée était d'injecter une goutte de colorant dans la suspension et de mesurer l'évolution de sa longueur déroulée. Cette approche est cependant limitée car elle ne peut s'appliquer de façon quantitative que pour des déformations relativement faible  $\dot{\gamma}t \leq 5$ .

Nous nous sommes donc orientés vers une autre approche directement inspirée de la *Diffusive Strip Method*. Cette méthode est efficace, peu coûteuse en temps de calcul, et surpasse les autres méthodes numériques car *in fine*, le champ de concentration peut être reconstruit quelque soit la valeur du coefficient de diffusion moléculaire. Cela étant, pour pouvoir l'utiliser, la forme analytique du champ de vitesses doit être connue, ce qui n'est pas le cas des suspensions de particules cisillées. Nous avons ici employé la *Diffusive Strip Method* d'une manière inédite en advectant des lignes matérielles non pas sur un champ de vitesses analytiquement connu, mais sur le champ de vitesses mesuré expérimentalement par PIV, cf. §2.4. Nous avons pu ainsi caractériser la cinématique de déformation produit par la présence de particules dans un cisaillement simple.

### 5.3 Résumé des résultats

- Le champ d'advection de la phase fluide a été caractérisé en réalisant des mesures PIV haute résolution, pour une large gamme de fraction volumique  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ . En s'inspirant de la *Diffusive Strip Method*, un large ensemble statistique de lignes matérielles a ensuite été advecté sur ces champs de vitesses expérimentaux.

- Le résultat principal est que la présence des particules change la nature des lois d'étirement. Sur toute la gamme de fraction volumique étudiée, les étirements, linéaires dans un fluide pur cisillé, deviennent exponentiels en présence de particules. La moyenne et l'écart-

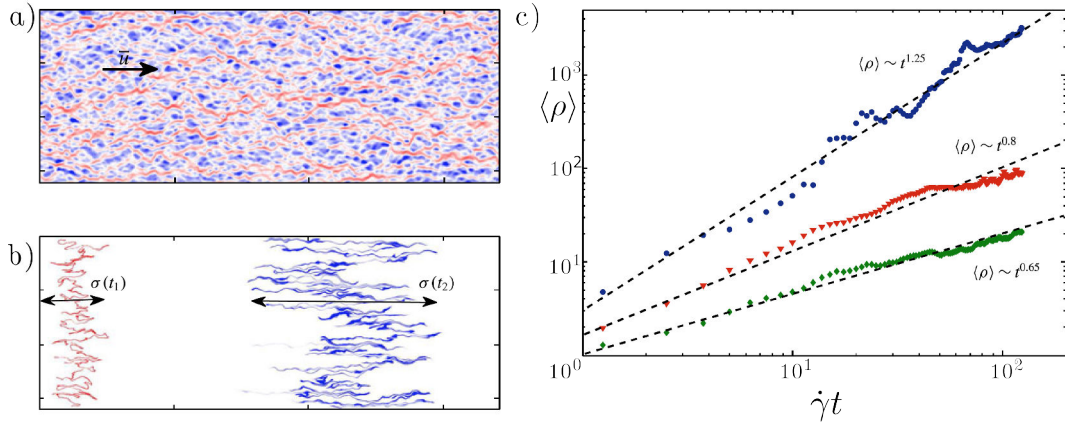


FIGURE 5.6 – a) Champ de vitesses dans un poreux obtenu numériquement à partir de l'équation de Darcy et une distribution de conductivité hydraulique lognormale. b) Reconstitution par *Diffusive Strip Method* de l'étirement d'une ligne matérielle dans ce milieu poreux, pour 2 instants successifs. c) Etirement moyen en loi de puissance dans un milieu poreux. La valeur de l'exposant dépend de la perméabilité du milieu simulé. Extraits de Le Borgne *et al.* [3].

type des étirements croissent exponentiellement et la distribution des étirements converge vers une distribution de type log-normale.

- À partir des mêmes champs de vitesses, nous avons déterminé la distribution des taux de cisaillement locaux et leur temps de persistance. Basé sur ces deux quantités, nous proposons un modèle d'étirements multiplicatifs décrivant l'historique d'étirement des lignes matérielles comme une succession de cycles d'étirements décorrélés les uns des autres. Ce modèle analytique simple permet de prédire quantitativement l'évolution de la moyenne, de la variance, et la forme log-normale des distributions d'étirements mesurées expérimentalement.

-Les conséquences de ces lois d'étirements sur les temps de mélanges sont discutées. Nous montrons que l'inhomogénéité de l'étirement dans les suspensions cisillées résulte en une large distribution du temps de mélange, en accord qualitatif avec nos mesures expérimentales.

## 5.4 Questions ouvertes

-La connaissance des lois d'étirement nous donne à présent la possibilité de décrire le processus de mélange jusqu'au bout. En considérant l'effet de la diffusion moléculaire, il est en effet possible de déterminer l'évolution des distributions de concentration  $P(C)$  soit analytiquement à partir des lois d'étirement, soit à partir de la *Diffusive Strip Method* en reconstruisant numériquement le champ de concentration autour des lignes matérielles advectées. Ce travail, qui donnera une caractérisation complète du processus d'homogénéisation d'un scalaire dans les suspensions cisillées, reste à faire. Ces prédictions devront aussi être comparées à des mesures expérimentales quantitatives de l'évolution des champs de concentration. Ce travail n'a pu être réalisé au cours de cette thèse en raison du temps imparti et de certaines difficultés expérimentales qui seront plus amplement discutées dans les Perspectives du Chapitre 6.

- Nous avons caractérisé les lois d'étirement à partir de mesures réalisées dans le plan de cisaillement. Notre système est pourtant tri-dimensionnel ; on peut alors se demander si les lois auraient été les mêmes en réalisant des mesures 3D. Comme ce sera évoqué dans l'ar-

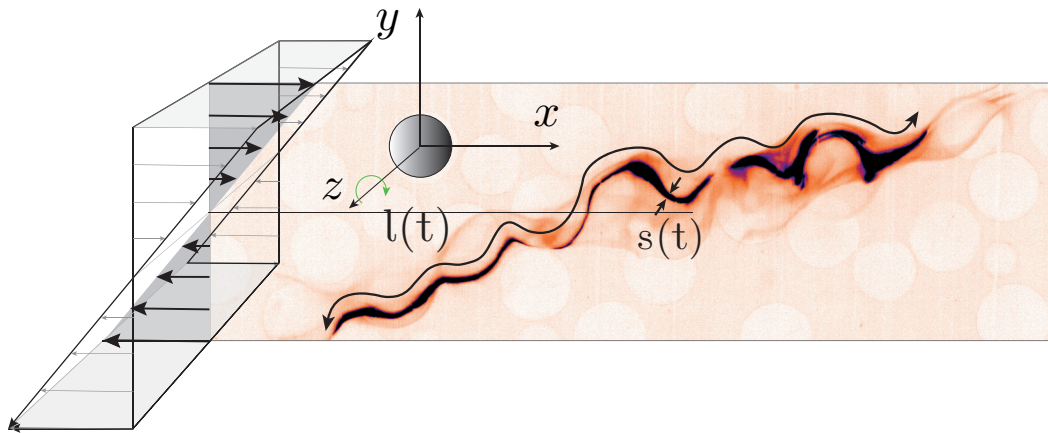


FIGURE 5.7 – La mesure des lois d'étirements dans le plan de cisaillement  $xy$  capture l'essentiel des étirements.

ticle, nous pensons que l'essentiel des étirements est correctement capturé à partir de nos mesures. Premièrement, l'observation dans le plan de cisaillement ( $xy$ ) permet de résoudre le déplacement des lignes matérielles dans la direction du gradient de l'écoulement. En se couplant à l'écoulement moyen, ces déplacements sont à l'origine de l'intensification des étirements. Ce couplage n'a pas lieu dans la direction ( $z$ ), cf. Figure 5.7. Deuxièmement, dans un cisaillement simple, les particules tournent principalement sur leur axe correspondant à la direction de la vorticit  (z). Cette rotation des particules induit des  tirements principalement dans le plan de cisaillement ( $xy$ ), o  les mesures ont  t r alis es. Ces remarques nous indiquent que nos mesures effectu es dans le plan de cisaillement capturent l'essentiel de la cin matique de d formation. Pour confirmer cela, il serait int ressant soit de faire des mesures exp rimentales de type PIV-3D (travail rapidement fastidieux), soit d'utiliser les champs de vitesses 3D issus de simulations num riques de type Lattice-Boltzmann afin de reconstruire les lois d' tirements et les comparer   celles que nous avons obtenues.

- Nous avons mesur  le champ de vitesses du fluide interstitiel, pour une large gamme de fraction volumique  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ . Dans le cadre de cette  tude, ces champs de vitesses ont  t utilis s pour reconstruire l'historique d' tirement de lignes mat rielles, pour dresser les cartes des taux de cisaillement locaux, et pour mesurer le temps de d corr lation des vitesses Lagrangiennes. Cela  tant, il reste une tr s grande quantit  d'informations   extraire de ces donn es, comme par exemple les distributions des fluctuations de vitesses et leur  volution avec la fraction volumique, les corr lations spatiales et temporelles du champ de vitesses et du champ de cisaillement locaux, la dimension fractale, ou encore les exposants de Lyapunov du syst me.

- La mesure des taux de cisaillement locaux du fluide interstitiel est une donn e particuli rement int ressante en ce qui concerne la compr hension du comportement rh ologique des suspensions. Il est bien connu que la viscosit  effective d'une suspension augmente avec la fraction volumique. En reliant cette augmentation de la dissipation macroscopique avec la distribution des taux de cisaillement locaux, on pourrait par exemple d terminer si, dans les suspensions cisail es, la dissipation est domin e par le cisaillement du fluide interstitiel, ou si une part non n gligeable de la dissipation a lieu au niveau des contacts frictionnels entre les particules. Cette question est actuellement fortement d battue (Chateau *et al.* [92], Lerner *et al.* [93], Dagois-Bohy *et al.* [94]).



## 5.5 Copie de l'article

# Stretching and mixing in sheared particulate suspensions

M. Souzy<sup>1</sup>, H. Lhuissier<sup>1</sup>, E. Villermaux<sup>2,†</sup> & B. Metzger<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Aix Marseille Université, CNRS, IUSTI UMR 7343, 13453 Marseille, France

<sup>2</sup>Aix Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, IRPHE UMR 7342, 13384 Marseille, France

<sup>†</sup>Institut Universitaire de France, Paris

(Received 23 September 2016)

We experimentally investigate mixing in sheared particulate suspensions by measuring a crucial kinematic quantity of the flow: the stretching laws of material lines in the suspending liquid. High-resolution PIV measurements in the fluid phase are performed to reconstruct, following the Diffusive Strip Method (Meunier 2010), the stretching histories of the fluid material lines. In a broad range of volume fractions  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ , the nature of the elongation law changes drastically from linear, in absence of particles, to exponential in the presence of particles: the mean and the standard-deviation of the material line elongations are found to grow exponentially in time and the distribution of elongations converges to a log-normal. A multiplicative stretching model, based on the distribution of local shear-rates and on their persistence time, is derived. This model quantitatively captures the experimental stretching laws. The presence of particles is shown to accelerate mixing at large Péclet numbers ( $\gtrsim 10^5$ ). However, the wide distribution of stretching rates results in heterogeneous mixing and hence, broadly distributed mixing times, in qualitative agreement with experimental observations.

## 1. Introduction

Sheared particulate suspensions represent a quasi-unique system where efficient dispersion spontaneously occurs even under low Reynolds number flow conditions. For instance, the transfer of heat (Sohn & Chen [51], Metzger *et al.* [19]) or mass (Wang *et al.* [54], Wang & Keller [53], Souzy *et al.* [65]) across a suspension of non-Brownian particles is significantly enhanced when the suspension is submitted to a macroscopic shear. This would not happen in a pure Newtonian fluid where the laminar streamlines remain perpendicular to the scalar (heat or concentration) gradients. In a sheared suspension, the macroscopic stationary imposed shear results at the particle scale in an unstationary flow : particles constantly collide with one another, change streamlines and thus generate disturbances within the fluid which promote the dispersion of the scalar, prelude to its subsequent mixing. Two mechanisms have been identified to explain the origin of the transfer enhancement. First, the *particle translational shear-induced diffusivity*, a phenomenon which has been widely investigated over the last decades (Eckstein *et al.* [20], Arp & Mason [6], Da Cunha & Hinch [7], Breedveld *et al.* [31], Sierou & Brady [38], Metzger *et al.* [19]). Second, the *particle rotation* whose impact is particularly important at the boundaries, where particles disrupt the diffusive boundary layer by a ‘rolling-coating’ effect (Souzy *et al.* [65]). These studies mainly focused on the rate of transfer *across* sheared suspensions which is customary characterized by an effective diffusion coefficient much larger than the scalar molecular diffusivity.

Another aspect of transport enhancement concerns the mixing properties of the system,

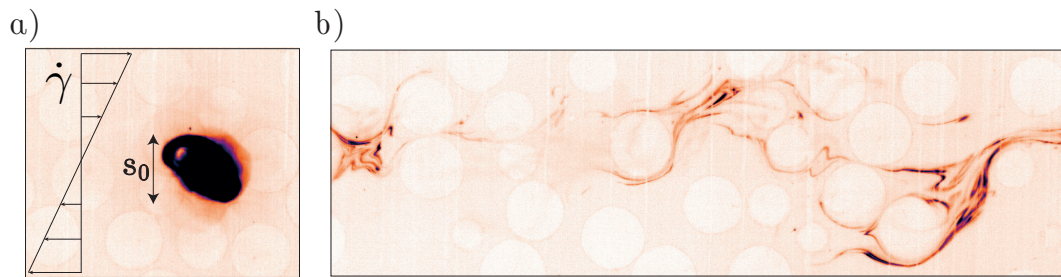


FIGURE 5.8 – Some dye, initially confined to a small blob in a flowing particulate suspension (a), mixes with the rest of the suspension (b) by diffusing while the blob is stretched in the complex micro-flow generated by the particles.

namely its ability, starting from a given spatial scalar distribution, to reach homogeneity. Figure 5.8 shows how a blob of dye with initial size  $s_0$ , diffuses while it is deformed by the complex flow in the interstitial fluid of a suspension. The important question which naturally arises is to understand how this initially segregated system reaches homogeneity, and particularly how long this process takes. By essence, it involves both advection by the flow and molecular diffusion of the scalar. Such a problem has been studied in a wide range of situations involving a single fluid phase such as shear flows (Ranz [81]), vortice flows (Meunier & Villiermaux [86]), turbulent jets (Duplat *et al.* [95]), or flows in porous media (Le Borgne *et al.* [3]). These studies all underline the crucial importance of the rate at which fluid material lines are elongated by the flow. The knowledge of these ‘stretching laws’ allows to estimate the mixing time : the time when the scalar concentration fluctuations start to significantly decay (Batchelor [82]). For instance, in a simple shear flow with rate  $\dot{\gamma}$ , the material lines grow as  $\dot{\gamma}t$ . In the limit of large Péclet number  $Pe = \dot{\gamma}s_0^2/D$ , the mixing time for a scalar blob of initial size  $s_0$  is  $t_{\text{mix}} \sim \dot{\gamma}^{-1}Pe^{1/3}$ , where  $D$  denotes the molecular diffusivity of the dye. In chaotic flows, where the stretching rate is maintained, the material lines stretch exponentially, as  $e^{\dot{\gamma}t}$ , and  $t_{\text{mix}} \sim \dot{\gamma}^{-1} \ln Pe$ .

In spite of their crucial importance for mixing issues, stretching laws in particulate suspensions have never been studied experimentally, nor have the general question about the mixing time in such a system been. Stretching in particulate suspension has been addressed indirectly using numerical simulations through the measurement of the suspension largest Lyapunov exponent (Dasan *et al.* [96], Drazer *et al.* [42], Metzger & Butler [46], Metzger *et al.* [47]). In such a chaotic system, the mean stretching rate of fluid elements can be assimilated to the largest Lyapunov exponent. The reported positive Lyapunov exponents indicate that the stretching laws must be exponential. Stretching has also been explored theoretically with the motivation of understanding the rheology of such system when the suspending fluid is viscoelastic. It was shown that the expected exponential stretching of the polymers should affect the pressure drop in fixed beds of spheres or fibres (Shaqfeh & Koch [97]) or the viscosity of freely suspended fibres in a simple shear flow (Harlen & Koch [98]).

In this paper, we specifically address the question of the stretching kinematics by performing experiments on non-Brownian and spherical particulates suspended in a viscous and Newtonian fluid that is steadily and uniformly sheared. In this limit, the flow kinematics is independent of both the shear rate  $\dot{\gamma}$  and the molecular diffusivity. The sole parameter expected to affect the stretching process is the particulate volume fraction  $\phi$ . We investigate the stretching laws in particulate suspensions varying the volume fraction over a wide range  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ , for which collective effects between particles are present but the suspension still flows easily, since it is still far from jamming. After presenting the experimental set-up in § 2, we first compare the evolution of a blob of dye sheared in a pure fluid (without particles) to that of a blob sheared in a suspension (§ 3). This experiment illustrates the complexity

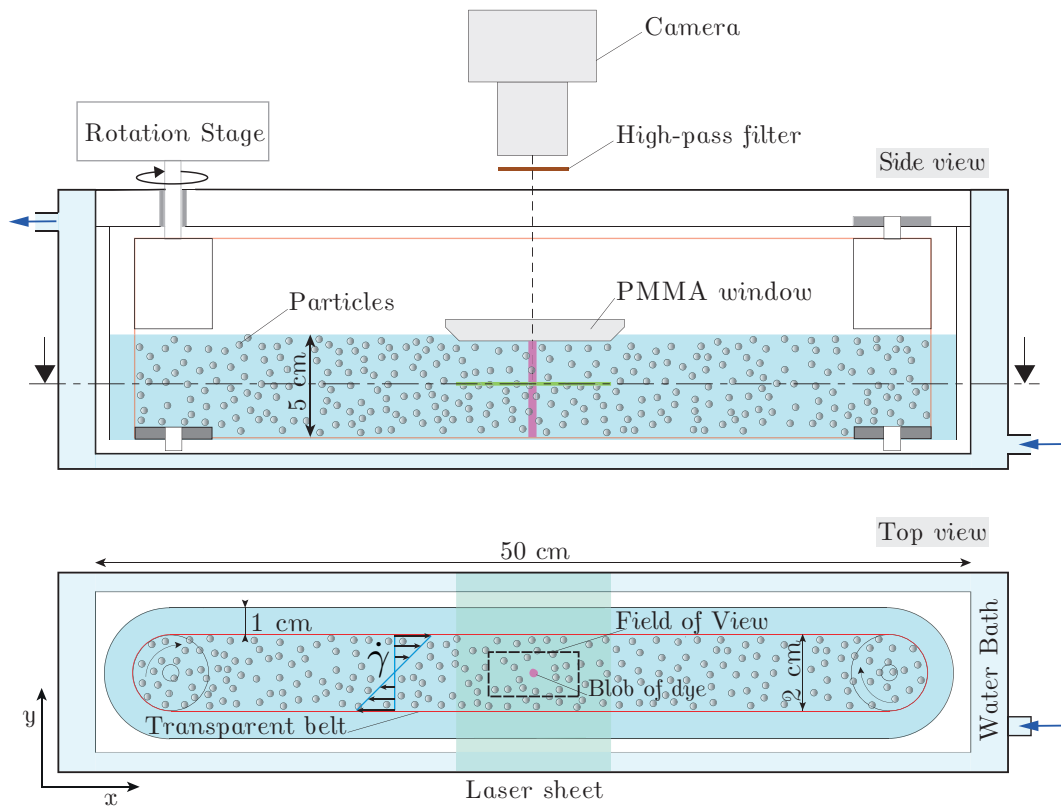


FIGURE 5.9 – Schematics of the set-up.

of the advection field induced by the presence of the particles. Then, following the Diffusive Strip Method of Meunier & Villermaux [63], accurate velocity field measurements of the fluid phase (§ 2.3) are used to determine the stretching laws. Material lines are found to stretch, on average, exponentially with time (§ 4), at a rate which agrees with the largest Lyapunov exponents reported in 3D Stokesian dynamic simulations (Dasan *et al.* [96], Drazer *et al.* [42]). Beyond the mean, we tackle the complete statistics of stretching, that is to say, the distributions of elongation as a function of strain and particle volume fraction, which are found to converge towards log-normal distributions. In § 5, we present a model, based on a multiplicative stretching process, which explains quantitatively the experimental distributions of the material line elongation and its dependance to  $\dot{\gamma}t$  and  $\phi$ . Finally, the crucial implication of these findings for scalar mixing are developed and discussed in § 6, before we conclude in § 7.

## 2. Experimental set-up

The experimental set-up is shown in figure 5.9. It aims at steadily and uniformly shearing a viscous particulate suspension, injecting a small blob of dyed fluid, and observing both the flow and the mixing of the dye. The set-up consists of a transparent cell in which a transparent mylar belt is tightly mounted at the top of the cell on two cylinders and at the bottom on two ball bearings. One cylinder is entrained by a rotating stage (M-061.PD from PI Piezo-Nano Positioning) with high angular resolution ( $3 \times 10^{-5}$  rad). The motion of the belt generates in its central region a linear shear flow. The suspension is allowed to flow below the cylinders and a constant spacing between the belt and the inner wall of the cell is maintained all around the cell. This specific design, which is an evolution of that

used in Metzger & Butler [99], minimizes secondary flows and ensures a velocity profile with constant shear rate within the belt.

## 2.1. Particles and liquid

The particles and the liquid are carefully chosen to allow the visualization of the dye and of the flow inside the suspension, as well as to ensure a purely viscous flow without buoyancy effects. This requires using a transparent media, matching both the density and the refraction index of the particles, and using a fairly viscous liquid.

To fulfill the above requirements, we use mono-disperse spherical particles (PMMA from Engineering Laboratories Inc.) with density  $\rho = 1.18 \text{ kg/m}^3$  and diameter  $d = 2 \text{ mm}$ , especially chosen for their smooth surface and good transparency. The liquid is a Newtonian mixture of Triton X-100 (77.4 wt %), Zinc Chloride (13.4 wt %) and water (9.2 wt %) with viscosity  $\eta = 3 \text{ Pa s}$  and having the same density as the particles at room temperature. Its composition is optimized to match both the refractive index and the density of the particles. A small amount of hydrochloric acid ( $\approx 0.05 \text{ wt\%}$ ) is added to the solution to prevent the formation of zinc hypochlorite precipitate, thereby significantly improving the optical transparency of the solution. Last, to finely tune the index matching between the particles and the liquid, the temperature of the set-up is adjusted with a water bath surrounding the shear cell.

The solid volume fraction  $\phi$  of the suspension is varied between 20 and 55%. To ensure that inertial effects are negligible, the shear rate  $\dot{\gamma}$  is set to typically  $0.15 \text{ s}^{-1}$ , which corresponds to a particulate Reynolds number  $\rho\dot{\gamma}d^2/\eta \sim 10^{-4}$ .

## 2.2. Imaging

The suspension is observed in the flow-gradient plane ( $xy$  plane) : a slice of suspension is illuminated by a laser sheet across the transparent belt and imaged from the top (see figure 5.9).

The laser sheet is formed by reflecting a laser beam (2 W, 532 nm) on a standard laser-printer mirror (rotating at  $\sim 10000 \text{ rpm}$ ). This technique was found to produce a light sheet with a better spatial homogeneity than that obtained with classical cylindrical or Powell lens techniques. The sheet is collimated and focused to a thickness of  $\sim 60 \text{ }\mu\text{m}$  with the help of two perpendicular plano-convex lenses. Last, a high-pass filter (590 nm) eliminates direct light reflexions. The suspension is imaged with a high-resolution camera (Basler Ace2000-50gm,  $2048 \times 1080 \text{ pixel}^2$ , 12bit) coupled to a high-quality magnification lens (Sigma APO-Macro-180 mm-F3.5-DG). To avoid that the particles distort the free surface of the suspension through which the visualization is realized, a small plexiglass window is positioned on the free surface, above the region of interest, which locally ensures a flat interface. The window has a small hole allowing the injection of a blob of dyed fluid with a syringe.

## 2.3. Velocity field measurements

The velocity field in the suspending liquid is measured in the plane of the laser sheet ( $xy$ ), at half-distance between the bottom and the free surface (see figure 5.10), performing particle image velocimetry (PIV), which yields the two-dimensional velocity field  $\{u, v\}$ . To perform PIV, the liquid is seeded with small passive fluorescent tracers ( $3.23 \text{ }\mu\text{m}$  PMMA B-particles from MF-Rhodamine) at a very low volume fraction ( $\sim 10^{-5} \ll \phi$ ). These small and diluted tracers do not affect the flow but allow its visualization and quantification, as shown in figure 5.10 and Chapitre5-Movie1. The large (2 mm) particles of the suspension do not interact with the laser sheet and appear as black discs. Note that all the particles have the same size ; the apparent size differences arise from their different vertical positions relative to the laser sheet plane. The PIV routine is adapted from a Matlab code developed by Meunier & Leweke [61]. Images are captured every 0.1s, which corresponds to a strain increment

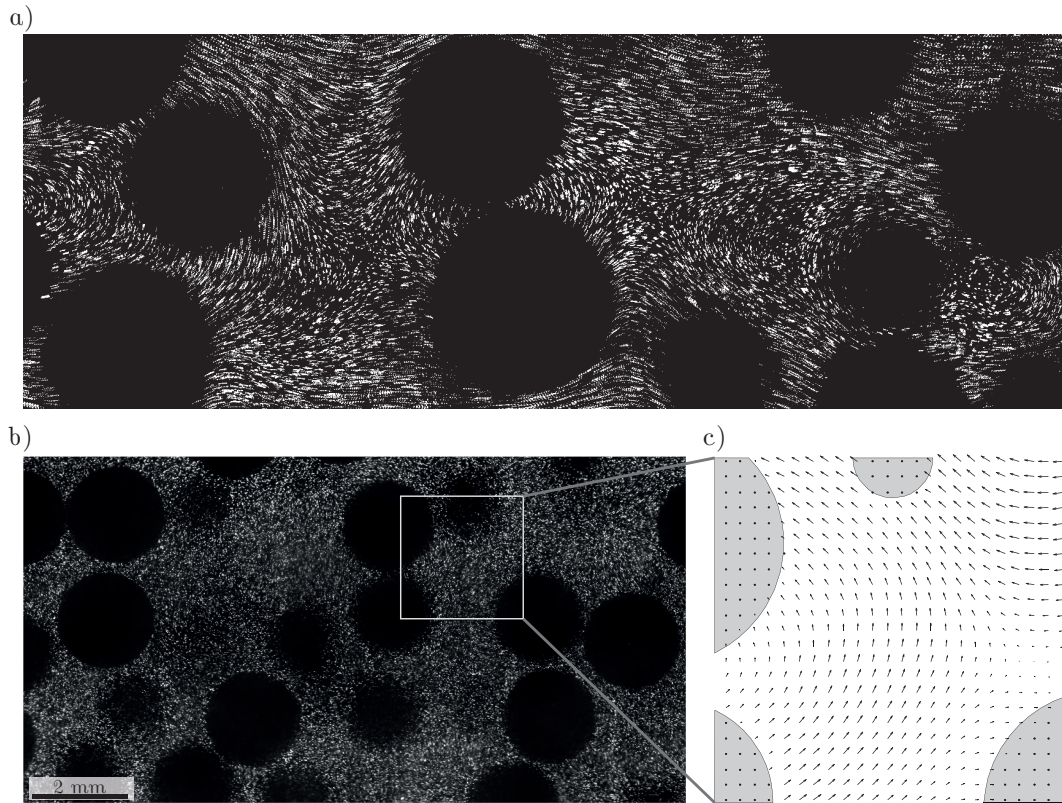


FIGURE 5.10 – a) Flow streamlines in the bulk of a suspension. b) Slice of a sheared suspension illuminated by a laser sheet. The small fluorescent tracers seeding the suspending fluid appear as bright whereas the particle intersections with the laser sheet appear as dark, see also Chapitre5-Movie1. c) Magnified view of the suspending liquid velocity field obtained from the PIV (the velocity is not computed in the particles).

of 0.015. To perform PIV, the images are divided into equally spaced and overlapping sub-images with a typical size of  $d/20$  (32 pixels). The local velocity field is computed by cross-correlating successive sub-images. The presence of a particle in the sub-image is detected with the help of two filters (for the maximum of correlation and for the standard deviation of the sub-images), in which case the corresponding velocity vector is not used (see figure 5.10b). For each volume fraction, three independent runs over a strain of 20 are performed. The independence of the measured velocity field on the PIV sub-image size was verified by decreasing the latter to  $\sim d/40$  (16 pixels). Besides increasing the data noise, no significant effect was found on the measured velocities.

## 2.4. Molecular diffusivity measurements

The molecular diffusion coefficient of the dye (rhodamine 6G) is measured by observing the spreading, in the absence of flow, of a slice of liquid depleted in dye. A small Hele-Shaw cell (100  $\mu\text{m}$  thick) is filled with dye-doped suspending liquid without particles. A thin slice of liquid is initially depleted in dye by bleaching the dye with a high power laser sheet across the cell (see figure 5.11). The depleted slice appears as a dark line having a gaussian profile which diffuses with the diffusion coefficient of the dye. The spatial variance of the gaussian profile  $\chi^2$  is measured over one day, and the diffusivity is determined from  $D = [\chi^2(t) - \chi^2(0)]/2t \simeq 1.44 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ . This value is consistent with that of  $4.14 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$  found by Culbertson *et al.* [60] for the diffusivity of the same dye in water, given that water

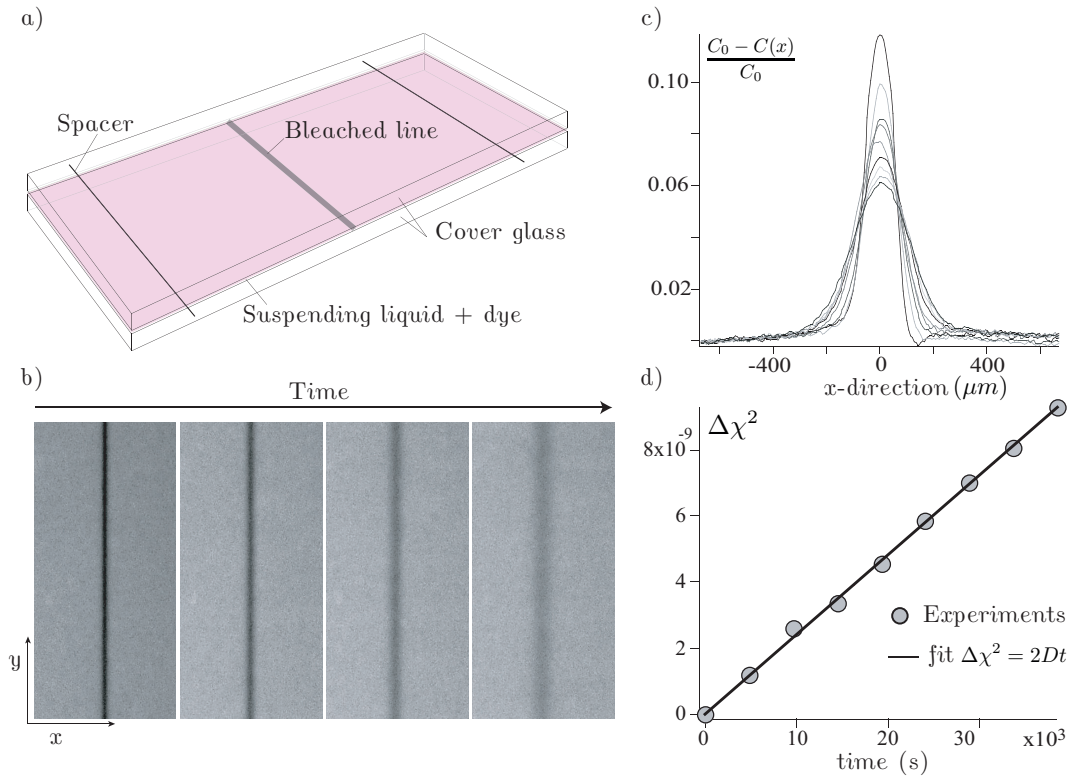


FIGURE 5.11 – a) Schematics of the set-up used to measure the molecular diffusivity  $D$  of the dye (rhodamine 6G), in the suspending liquid (TritonX+ZnCl<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O). b) Diffusive thickening of the bleached line at  $t = 0, 4800, 21600$  and  $64800$  s (the image width is 5 mm). c) Concentration profiles at successive times ( $0 < t < 64800$  s). d) Increase of the spatial variance of the concentration  $\chi^2(t) - \chi^2(0)$  versus time. Its fit to  $2Dt$  yields  $D = 1.44 \pm 0.2 \times 10^{-13} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ .

is 3000 times less viscous than the suspending liquid and that, according to the Einstein-Sutherland law,  $D \propto 1/\eta$ .

### 3. General observations

To illustrate the influence of particles on mixing in a shear flow, we first compare the evolution of a blob of dye sheared in a pure fluid (without particles) to that of a blob sheared in the suspension of particles, see Chapitre5-Movie2. A cylindrical blob of dyed fluid is injected, at rest and at  $t = 0$ , in the middle of the shear cell. Initially, the blob has a diameter  $s_0 \simeq 2$  mm, is aligned with the vorticity direction and is centered on the neutral velocity plane. This results in a macroscopically two-dimensional initial configuration, and ensures that the blob does not drift with the flow but only deforms. Figure 5.12 shows, for a Péclet number  $Pe \equiv \dot{\gamma} s_0^2 / D \sim 10^6$ , how mixing proceeds in the two sheared media, from the initial segregated state up to a strain  $\dot{\gamma}t = 20$ . In the pure liquid, the blob of dye stretches homogeneously. Its length increases linearly with time and the blob transverse dimension thus decreases as  $1/t$ . In the suspension, the situation is markedly different : the fluctuations induced by the particles in the fluid phase strongly impact the evolution of the blob. Several conspicuous features deserve being highlighted i) the dispersion and the unfolded length of the blob are significantly enhanced by the particles, ii) both translational diffusivity (trans-

verse undulations of the blob, see figure 5.12b) and rotation (blob winding around particles, see figure 5.12c) of the particles contribute to these enhancements, iii) the blob stretching is highly inhomogeneous : at some locations, its transverse dimension becomes much thinner and at others larger than in the pure fluid case, revealing regions of enhanced stretching and regions of compression, iv) at large strains (figure 5.12d), the blob has separated into several filaments which means that some regions of the blob have already mixed, while in the pure liquid (without particles) mixing has not occurred yet, v) in some regions, the blob evolves into bundles composed of several nearly overlapping filaments (Duplat & Villermaux [88]). This suggests an underlying stretching/folding mechanism similar to the well known baker's transform (Ottino [2]).

The above features are generic to the flow of a viscous suspension at large Péclet number. Since inertial effects are negligible, these features are independent of the rate  $\dot{\gamma}$  at which the suspension is sheared. Similarly, the value of the Péclet number does not influence the general stretching pattern of the blob, but only prescribes the strain  $\dot{\gamma}t$  at which diffusion starts to become effective.

This direct comparison clearly illustrates how the liquid velocity fluctuations generated by the particles dramatically accelerate the blob deformation and dispersion. This acceleration is apparent here from the beginning of the shear, because the blob size  $s_0$  is similar to the particle size  $d$ . It is however crucial to realize that the strain at which this acceleration establishes is expected to depend on the ratio  $s_0/d$ . If the initial size of the blob  $s_0$  is larger than  $d$ , the blob is essentially not stretched by the particle fluctuation motions. It is thus essentially stretched by the linear macroscopic shear until the blob transverse size has thinned down to  $d$ , after a typical strain  $s_0/d$ . From that strain on, the particulate fluctuations are expected to contribute directly to the blob stretching.

In stirred flows, such as the case considered here, mixing results from the coupling between advection and molecular diffusion. In the experiment described above, the blob of dye is stretched by the local velocity field : the blob is stretched along its own longitudinal direction and conversely compressed along its transverse direction. The blob thus evolves towards a topology constituted of sheets, or filaments (Ottino [2], Buch [100]). Conversely to the effect of advection, molecular diffusion tends to broaden the filaments. This diffusive broadening will at some point counter-balance the rate of compression of the blob caused by the advection. As we already mentioned, this naturally sets a time-scale called the mixing time,  $t_{\text{mix}}$ , beyond which the concentration levels drop significantly. The mixing time, a key element to understand the overall mixing process, can be estimated from the sole knowledge of the dye molecular diffusion coefficient and from the history of the transverse dimension of the blob. If one assumes that the flow is two-dimensional (this assumption is discussed in § 5.3), incompressibility and mass conservation relate at any time the transverse size of the blob to its length  $l$ , through  $s_0 l_0 = s(t)l(t)$ . The mixing time can therefore be estimated from the characterization of the evolution of  $l(t)$ . Our goal in the following is thus to determine the so-called 'stretching laws', *i.e.*, the time dependence of  $l$  in sheared particulate suspensions.

## 4. Experimental stretching laws

Our first attempt to measure the unfolded length of the blob  $l(t)$  was naturally to perform direct image analysis on images such as those shown in Figure 5.12. However, the intrinsic dispersion process rapidly distorts the blob into bundles of very close (sometimes merging) filaments, which renders image analysis ineffective above strains of typically 5.

To overcome these limitations, we adopted a different approach inspired from the Diffusive Strip Method. This method happens to be a very powerful experimental tool allowing the determination of the stretching laws over unlimited strains. The key idea is to use the experimental fluid velocity field to numerically advect passive material lines representing portions of the blob. The lines are initially composed of three passive tracers separated by

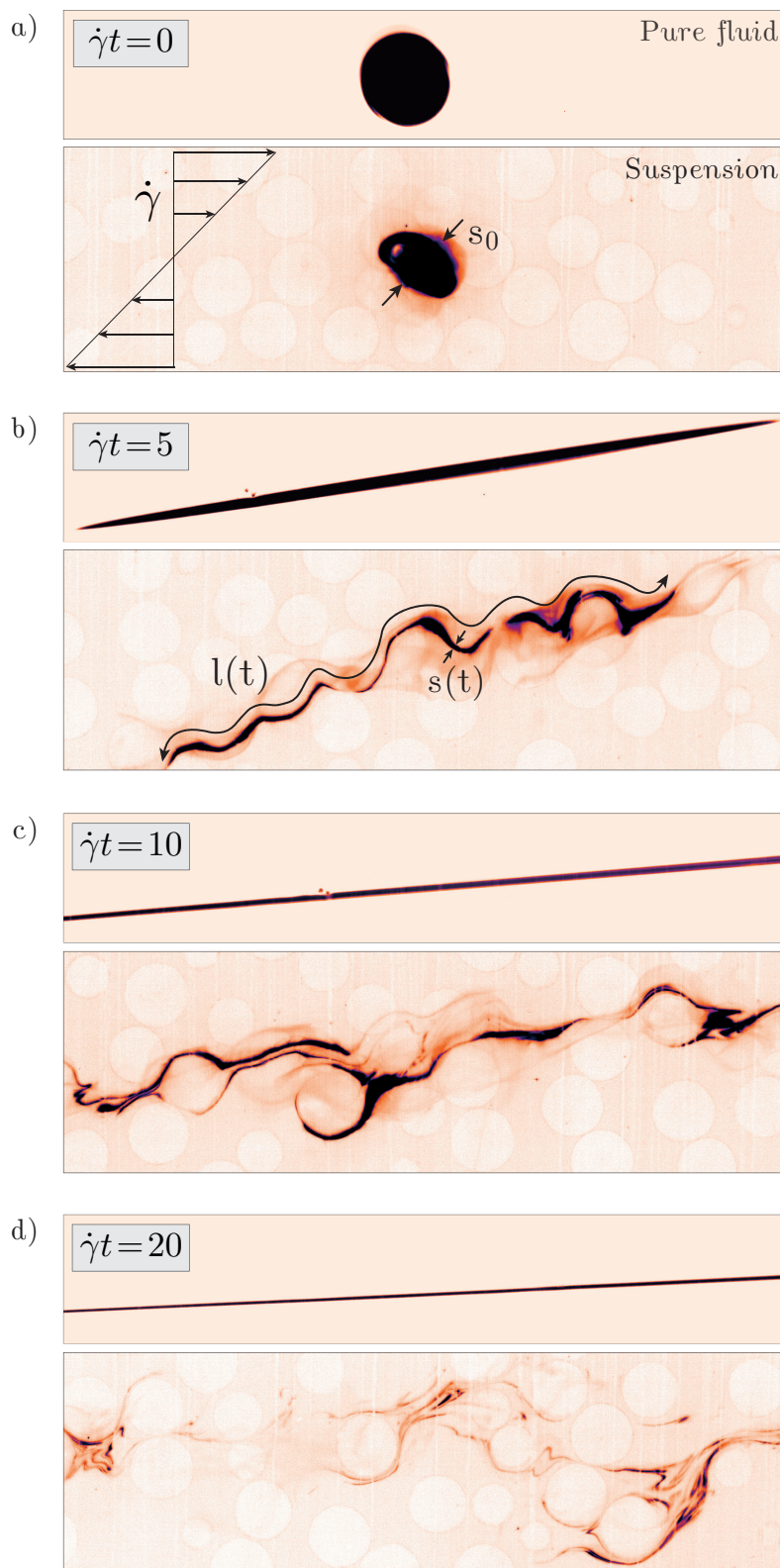


FIGURE 5.12 – Comparison of the stretching processes of a blob of dye sheared at high Péclet ( $\sim 10^6$ ) and low Reynolds numbers ( $\sim 10^{-4}$ ), in a pure fluid (top), and in a particulate suspension with volume fraction  $\phi = 35\%$  (bottom). The dye appears as dark, and the beads appear as bright, see also Chapitre5-Movie2.



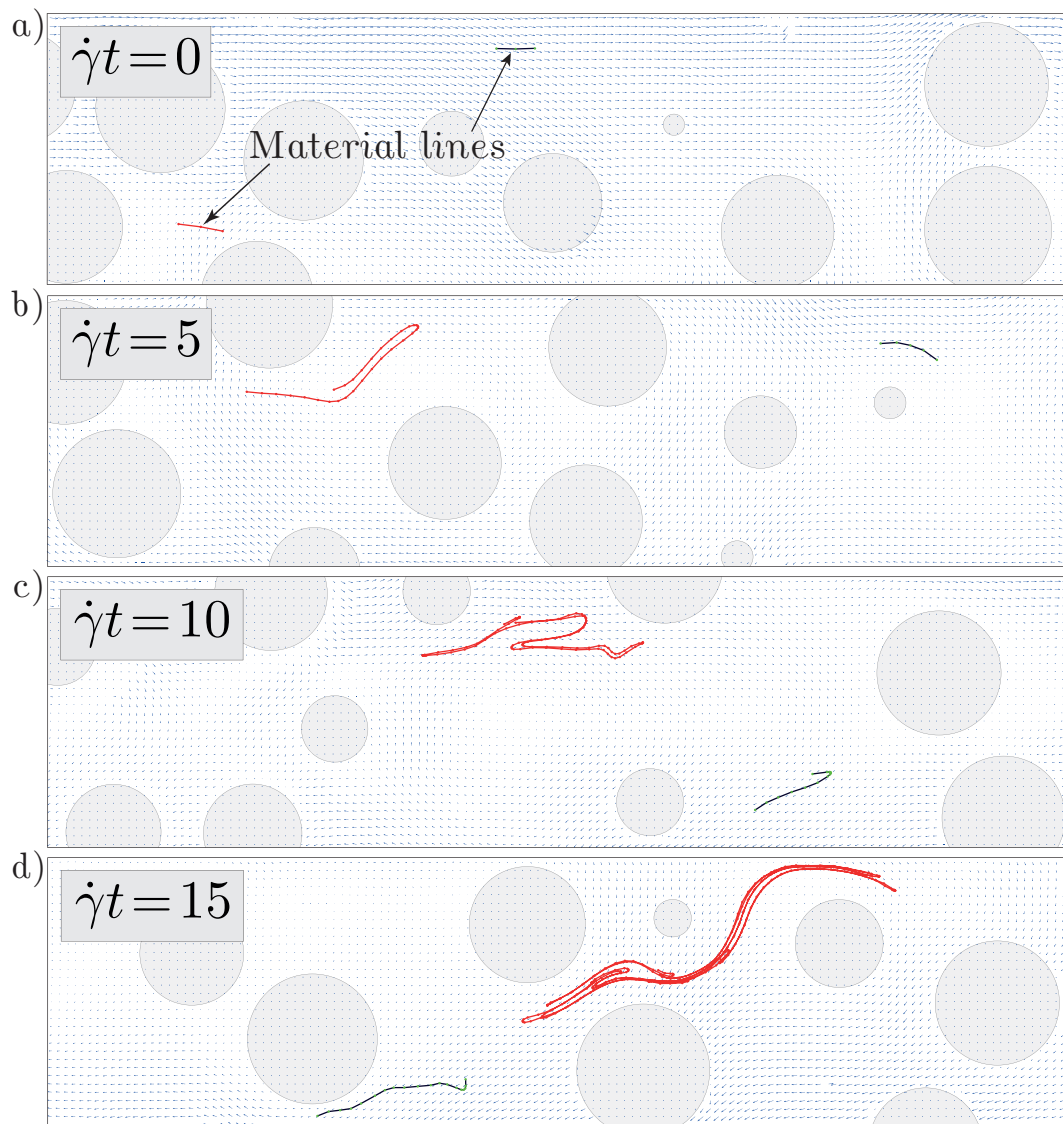


FIGURE 5.13 – Example of stretching for two material lines numerically advected using the experimental fluid velocity field, see also Chapitre5-Movie3.

a distance  $d/20$  which discretize a fluid material line. The lines are randomly located in the two-dimensional velocity field with a random orientation (see figure 5.13a). Each tracer with coordinate  $\mathbf{x}$  is advected independently from each other according to the local fluid velocity  $\mathbf{v}(\mathbf{x})$  (obtained by linear interpolation of the instantaneous PIV velocity field) as  $\mathbf{x}(t + \Delta t) = \mathbf{x}(t) + \mathbf{v}(\mathbf{x})\Delta t$ , where  $\Delta t$  is the time between consecutive measurements of the velocity field. As a material line is advected, it is refined by adding more tracers when its length increases or when its local curvature becomes too large (see Meunier & Villermaux [63] for a detailed description of the refinement procedure).

Figure 5.13 shows the evolution of two material lines up to a strain of 15, see also Chapitre5-Movie3. The red line successively stretches and folds very similarly to what is observed in the blob experiments (figure 5.12). Interestingly, the blue line behaves very differently. Although it sustains the same macroscopic strain as the red one, it experiences a much softer stretching only because it started from a different initial location. These different stretching histories reveal the stochastic nature of the stretching induced within particulate suspensions. The stretching laws therefore have to be sought in a statistical sense by repeating the advection procedure over a large number of independent material lines. However, as the material lines lengthen, they may reach the boundaries of the measured velocity field, which limits the maximum strain that can practically be investigated (typically  $\dot{\gamma}t < 10$ ). This problem is easily circumvented by realizing that, as long as the stretching laws are concerned, the object of interest is not the material line as a whole but rather the small segments which compose this line and which all stretch differently from each other. We thus perform a new set of calculations focusing on segments : i) initial segments (composed of two tracers) with length  $d/20$  are positioned and oriented randomly in the flow, ii) each time the length of a segment doubles, it is splited in two individual segments that are subsequently advected independently, iii) if a segment reaches the boundary of the velocity field, it is re-injected near the center of the velocity field, iv) when a segment overlaps with a particle, where the velocity field is undefined (as can happen due to the finite time  $\Delta t$ ), it is frozen until the particle has moved away. Owing to these rules, virtually unlimited strains can be considered, and the stretching history of each segment that have been created over this strain can be determined. We define the elongation of these segments as the ratio

$$\rho(t) \equiv \delta l(t)/\delta l_0 \quad (5.13)$$

of their current length  $\delta l(t)$  to their initial length  $\delta l_0$  where  $\delta l_0 = (d/20)/2^n$ , with  $n$  the number of times the sub-segment was splited in two. Note that to compute the distributions of elongations we present below, the contribution of each segment is weighted by its initial length. Note also that times for which a segment is frozen are not considered. The distribution of elongations at time  $t$  therefore represents the portion of the blob that has reached a given elongation after being advected for a duration  $t$ . It was built from the stretching histories of 25000 segments advected over 3 independent experimental velocity fields, each of them recorded for a total strain of 20 (typically 4000 images).

Figure 5.14 shows the experimental stretching laws obtained for a suspension with  $\phi = 35\%$ , which is generic to the volume fraction range 20 to 55% investigated. It presents the mean value  $\langle \rho \rangle$  and the standard deviation  $\sigma_\rho \equiv \sqrt{\langle \rho^2 \rangle - \langle \rho \rangle^2}$  of the elongation for strains up to 20. At  $\dot{\gamma}t = 20$ , the segments have on average lengthened by typically  $10^3$ , which is about one hundred times larger than in the case of a pure liquid. The striking result is that the presence of particles in a shear flow changes the very nature of the stretching laws from linear to exponential. Indeed, the elongation of material line in a simple shear (without particles) follows

$$\rho_{\text{lin}}(\theta, t) = \sqrt{1 + 2 \cos \theta \sin \theta \dot{\gamma}t + \sin^2 \theta \dot{\gamma}^2 t^2}, \quad (5.14)$$

where  $\theta$  denotes the angle between the line initial orientation and the flow direction. On averaging  $\rho_{\text{lin}}^2(\theta, t)$  over all possible orientations, we obtain

$$\rho_{\text{lin}}(t) = \sqrt{1 + \dot{\gamma}^2 t^2 / 2}, \quad (5.15)$$

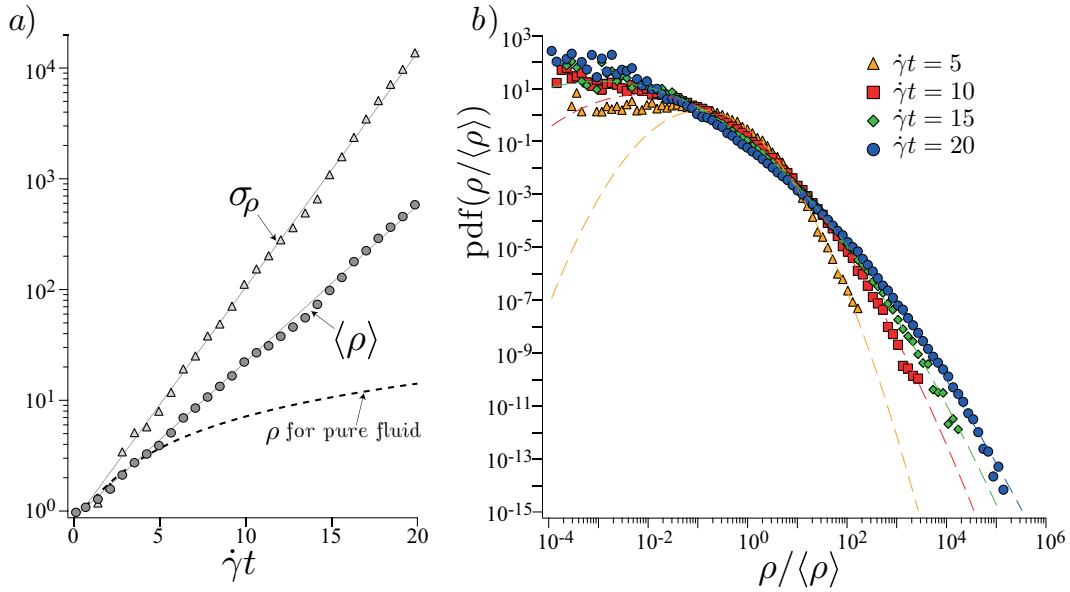


FIGURE 5.14 – Stretching laws measured for a suspension with volume fraction  $\phi = 35\%$ . a) Mean value  $\langle \rho \rangle$  and standard deviation  $\sigma_\rho = \sqrt{\langle \rho^2 \rangle - \langle \rho \rangle^2}$  of the distribution of elongations versus macroscopic strain in a semilogarithmic representation. The dashed line corresponds to the mean elongation in a pure fluid  $\rho_{\text{lin}}(t) = \sqrt{1 + \dot{\gamma}^2 t^2 / 2}$ . b) Distribution of the normalized elongations  $\rho/\langle \rho \rangle$  at different strains. The dashed curves are log-normal distributions built from the mean value  $\langle \rho \rangle$  and standard deviation  $\sigma_\rho$  of the experimental elongation distributions.

which is only of order 10 for a strain of 20, and increases linearly with time for large strains. Equation (5.15) is plotted in figure 5.14 to illustrate the contrast with the elongations actually measured in particulate suspensions : the mean elongation in suspensions is different both in magnitude and in law.

Moreover, by contrast with the pure fluid case, the stretching variability of individual material lines is very broad as evidenced by the exponential growth of the standard deviation  $\sigma_\rho$ . These results corroborate the preliminary blob experimental visualizations where, in the suspension, many filaments having very different transverse thickness can be observed while the pure fluid case solely exhibits one uniform thickness, (figure 5.12d). More precisely, figure 5.14b shows the distributions of the relative elongations  $P(\rho/\langle \rho \rangle)$  at successive strains. The distribution of elongations broadens rapidly such that at a strain  $\dot{\gamma}t = 20$ , it spans more than eight decades. At that strain, the right tail of the distribution contains segments elongated  $10^4$  times relative to the average  $\langle \rho \rangle$ , which corresponds to an absolute elongation of  $\rho \sim 10^7$ , in stark contrast with the uniform average elongation of 10 obtained in a simple shear. As figure 5.14b shows, these distributions are found to be well fitted by log-normal distributions (shown as dashed lines). Note that the apparent absence of data on the left hand side of the distributions is fully consistent with log-normal distributions. Indeed, for broad distributions, the statistical weight of the left hand side of the distribution vanishes. Our data thus fully resolve the meaningful part of the distribution.

The advective strip method presented above was repeated with velocity fields measured in suspensions with different volume fractions  $\phi$  ranging from 20% to 55%. The same trends as those detailed for  $\phi = 35\%$  are systematically observed. As shown in figure 5.15, it is moreover found that larger particulate volume fractions increase both the growth rate of the average elongation  $\langle \rho \rangle$  and that of the standard deviation  $\sigma_\rho$ . This indicates that a larger volume fraction results in larger fluid disturbances which, in turn, induce a faster and more

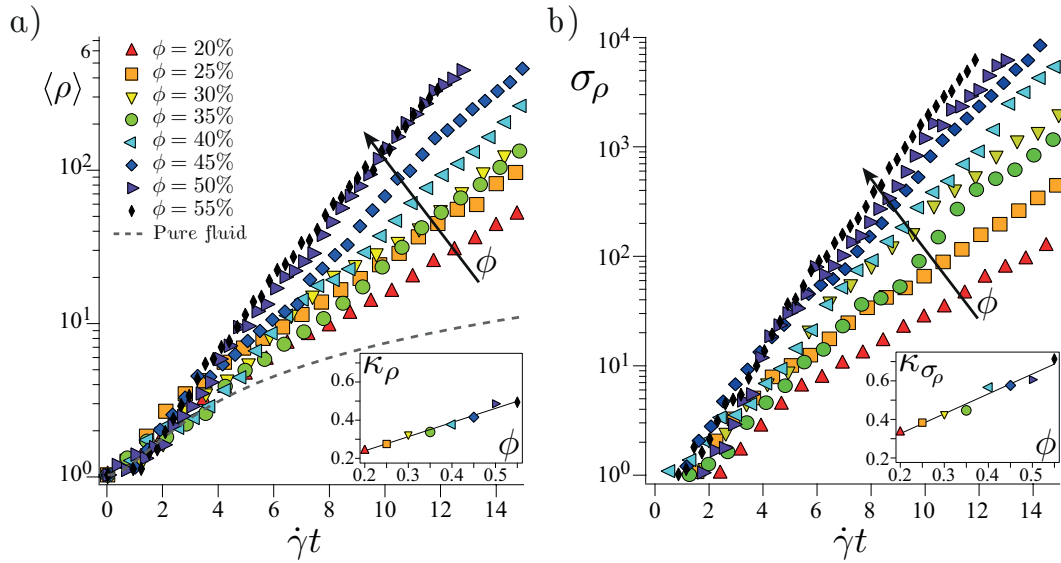


FIGURE 5.15 – Mean elongation  $\langle \rho \rangle$  (a) and standard deviation  $\sigma_\rho$  (b) versus strain for increasing volume fractions ranging from 20 to 55%. Insets : growth rate  $\kappa$  of the exponential fit  $e^{\kappa\dot{\gamma}t}$  to the main curves, as a function of  $\phi$ . The lines show  $\kappa_\rho = 0.09 + 0.74\phi$  (a), and  $\kappa_{\sigma_\rho} = 0.12 + 1.03\phi$  (b).

random elongation of the fluid material lines. Fitting these curves with exponential growths in strain  $e^{\kappa\dot{\gamma}t}$  yields for  $\langle \rho \rangle$ ,  $\kappa_\rho = 0.09 + 0.74\phi$ , and for  $\sigma_\rho$ ,  $\kappa_{\sigma_\rho} = 0.12 + 1.03\phi$ . In the range of volume fraction investigated, the growth rates are found to increase linearly with  $\phi$ . No measurements could be performed above 55% as the large normal stress built in the suspension starts to deform the belt.

To summarize, by kinematically advecting passive segments using the experimental velocity fields of the fluid phase, we measured the elongation of fluid material lines in sheared particulate suspensions. Two important features characterize these elongations : i) the mean and the standard deviation grow exponentially, ii) the distribution converges to a log-normal. In the following, using two measurable properties of the fluid velocity field, namely the local shear rate distribution and the Lagrangian correlation time, we present a mechanism accounting for these observations.

## 5. Origin of the stretching laws

### 5.1. Principle

We consider the elementary component of a fluid material line : the segment, see figure 5.16. At that scale, much smaller than the particle size, the local shear  $\dot{\gamma}_{loc}$  is uniform. Considering the broad distribution of the segment orientations, we assume that the local shear rate has a random orientation with respect to the segment. Therefore, as long as the local shear rate  $\dot{\gamma}_{loc}$  persists, the average elongation of the segment is (see equation 5.15)

$$\rho = \sqrt{1 + \dot{\gamma}_{loc}^2 t^2 / 2}. \quad (5.16)$$

Note that an individual segment can be stretched or compressed depending on whether it is located in a diverging or compressive region of the flow, respectively. However, once averaged over all possible orientations, the segment net elongation is strictly larger than unity. Two

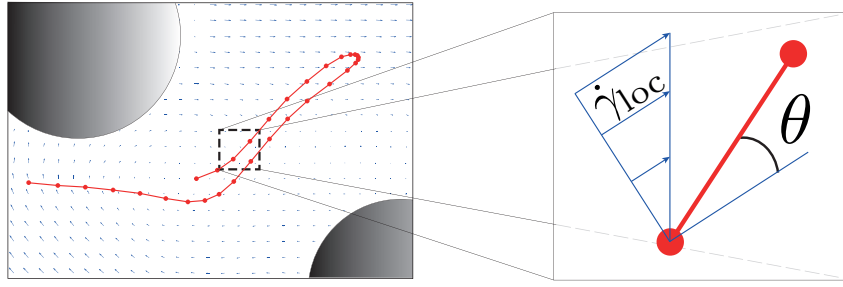


FIGURE 5.16 – Each segment composing a fluid material line is locally stretched by a simple shear  $\dot{\gamma}_{loc}$  which is oriented with a random angle  $\theta$  with respect to the segment.

questions then naturally emerge : what are the local shear rates? and how long do these shear rates persist? In the following two sections, we address these questions by providing information about the local shear rates and the Lagrangian correlation time of the velocity field.

### 5.1.1. Local shear rate

We measure the local shear rate from the experimental two-dimensional velocity fields. To this end, we define the local shear rate by the norm of the symmetric part of the strain tensor :

$$\dot{\gamma}_{loc} = \sqrt{2 \left( \frac{\partial u}{\partial x} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial v}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right)^2}, \quad (5.17)$$

where  $\{u, v\}$  are the  $\{x, y\}$  components of the velocity field. This definition disregards the rotation part of the strain tensor. For a simple shear, one has  $\dot{\gamma}_{loc} = \text{cte} = \dot{\gamma}$ . Figure 5.17a shows a typical local shear rate map, obtained in a suspension with volume fraction  $\phi = 35\%$ . The color-scale represents  $\dot{\gamma}_{loc}$  amplitude normalized by the applied macroscopic shear rate  $\dot{\gamma}$ , that is to say the amplification of the shear due to the presence of particles. The local shear rate is highly non-uniform and its value can greatly exceed the macroscopic shear rate. Interestingly, large local shear rates occur preferentially in the vicinity of the particles, however there is no apparent correlation between large local shear rates and small inter-particle distances.

More quantitatively, we report in figure 5.17b the distribution of normalized local shear rates obtained for various volume fractions. Clearly, the local shear rate exceeds most of the time the imposed macroscopic shear rate, sometimes by one order of magnitude, and this trend accentuates with increasing volume fractions. The mean normalized value  $\langle \dot{\gamma}_{loc} \rangle / \dot{\gamma}$  is plotted versus  $\phi$  in the inset of figure 5.17c. It is found to fit well  $\langle \dot{\gamma}_{loc} \rangle / \dot{\gamma} = A / (\phi_c - \phi)^\delta$ . Fixing  $\phi_c = 0.58$  this yields  $A \simeq 0.56$  and  $\delta \simeq 0.7$ . Note that the last point, corresponding to  $\phi = 55\%$ , was not included in the fitting procedure since we suspect that it is biased by the deflexion of the belt mentioned above. Note also that PIV using smaller boxes resulted in very similar local shear rate distributions with less than 6% difference on the average.

The trends discussed above may also be interpreted in terms of a macroscopic viscosity. In such case, the relevant quantity to investigate is the second moment of the local shear rate distribution  $\langle \dot{\gamma}_{loc}^2 \rangle$  (Chateau *et al.* [92], Lerner *et al.* [93], Dagois-Bohy *et al.* [94]). Values of this quantity have recently been obtained by Trulson *et al.* from numerical simulations of dense frictional suspensions (Trulson *et al.* [101]). They report that  $\sqrt{\langle \dot{\gamma}_{loc}^2 \rangle} / \dot{\gamma} \sim (J/\mu)^{-1/3}$ , where  $J = \dot{\gamma} \eta_f / P$  is the viscous number, with  $P$  the confining pressure, and  $\mu$  the suspension macroscopic friction coefficient. Since  $\eta_s / \eta_f = \sigma / \dot{\gamma} \eta_f = \mu / J$ , this results in  $\sqrt{\langle \dot{\gamma}_{loc}^2 \rangle} / \dot{\gamma} \sim (\eta_s / \eta_f)^{1/3}$ . Combining this with  $\eta_s / \eta_f \sim (\phi_c - \phi)^{-2}$  and using  $\phi_c = 0.58$  (Boyer *et al.* [102])

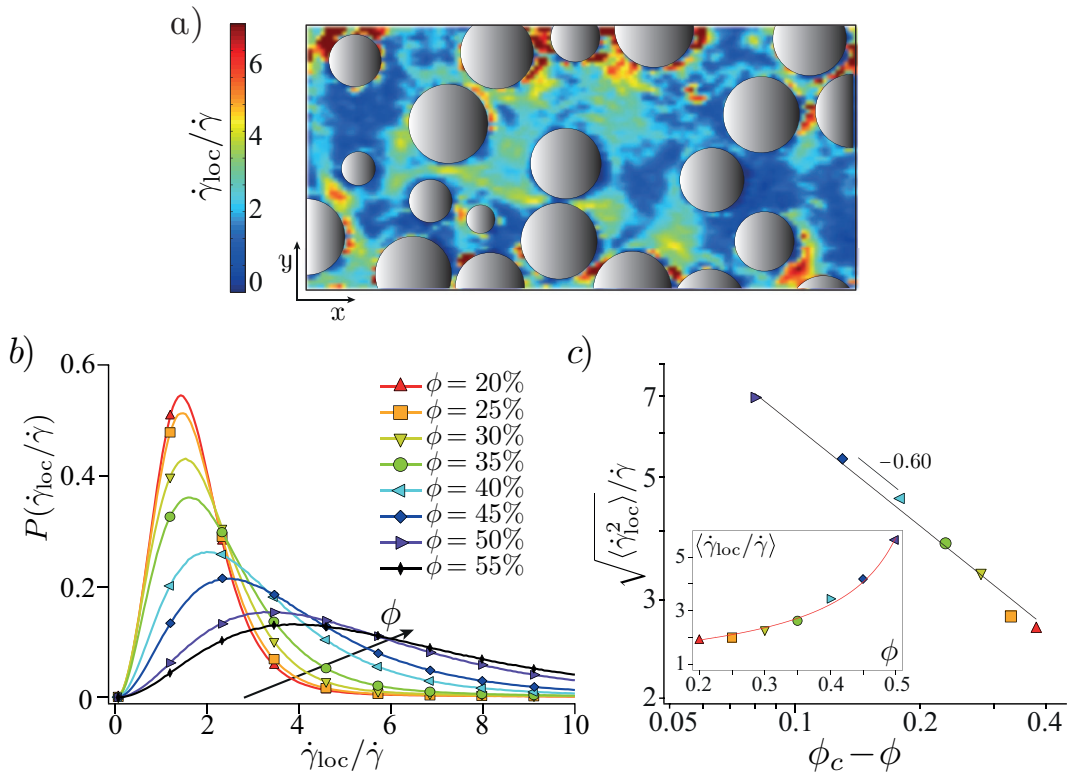


FIGURE 5.17 – a) Typical local shear rate map for a suspension with volume fraction  $\phi = 35\%$ . b) Experimental distributions of normalized local shear rate  $P(\dot{\gamma}_{\text{loc}}/\dot{\gamma})$  for different volume fractions (the solid line is not a fit but the experimental data, sparse markers are used for sake of clarity). c)  $\sqrt{\langle \dot{\gamma}_{\text{loc}}^2 \rangle}/\dot{\gamma}$  versus  $\phi_c - \phi$ . The best fit  $\sqrt{\langle \dot{\gamma}_{\text{loc}}^2 \rangle}/\dot{\gamma} \sim (\phi_c - \phi)^{-\beta}$ , with  $\phi_c = 0.58$ , yields  $\beta = 0.601$  (see text). Inset : mean normalized local shear rate  $\langle \dot{\gamma}_{\text{loc}}/\dot{\gamma} \rangle$  versus  $\phi$ . The line is the best fit by  $A/(\phi_c - \phi)^\delta$ .

leads to  $\sqrt{\langle \dot{\gamma}_{\text{loc}}^2 \rangle}/\dot{\gamma} \sim (\phi_c - \phi)^{-2/3}$ , which is in fairly good agreement with the measured scaling, as figure 5.17c shows.

### 5.1.2. Lagrangian correlation time

The second important quantity of the suspending liquid flow is the persistence time of the velocity fluctuations induced by the particles. Figures 5.18a and b show the transverse Lagrangian velocity  $V$  (perpendicular to the flow) of a passive tracer advected by the fluid at a low and a large volume fraction, respectively. Consistently with the magnitude of the local shear, more concentrated particulate suspensions develop velocity fluctuations with larger amplitudes. However these fluctuations are found to persist on a much shorter time as  $\phi$  increases. The duration  $t_c$  for which a segment is coherently stretched by the flow is directly prescribed by this persistence time, which we define from the Lagrangian velocity auto-correlation functions. As shown in figure 5.18c, these functions decorrelate exponentially with strain. In the range of volume fraction investigated, the dimensionless correlation time  $\dot{\gamma}\tau$ , inferred from this exponential decay, decreases linearly with  $\phi$  as

$$\dot{\gamma}\tau \simeq 0.62 - 1.08\phi, \quad (5.18)$$

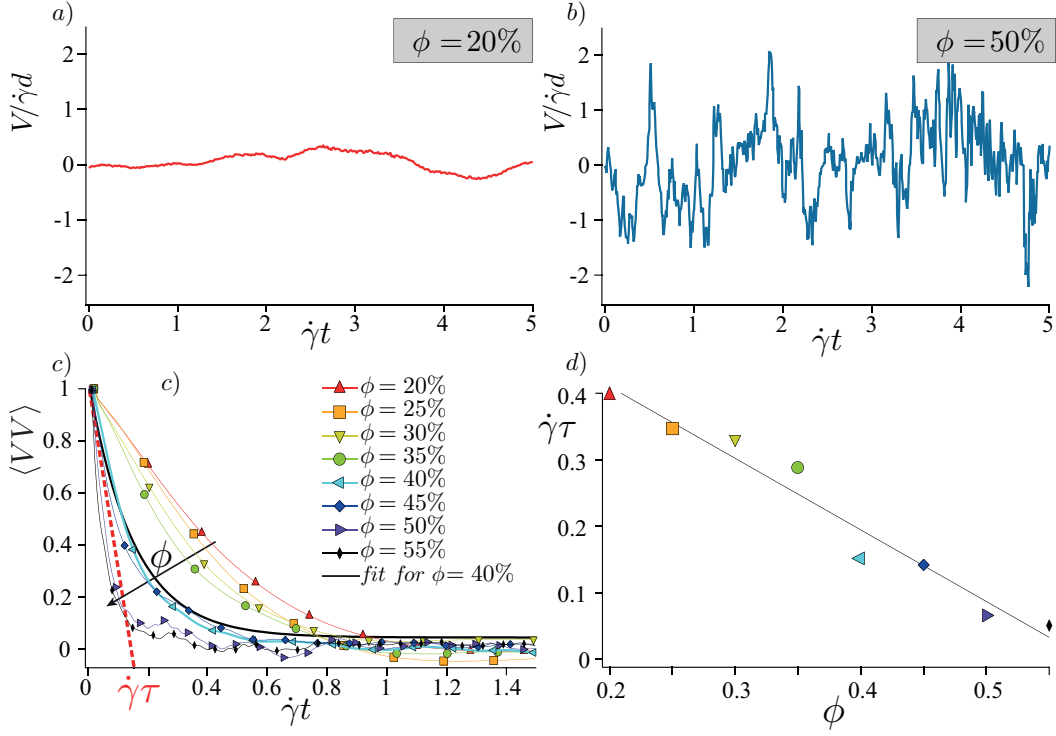


FIGURE 5.18 – (a-b) Lagrangian velocity transverse to the flow of a tracer passively advected by the suspending liquid  $V$ , as a function of the strain  $\dot{\gamma}t$ . a)  $\phi = 20\%$  and b)  $\phi = 50\%$ . c) Average Lagrangian velocity auto-correlation function  $\langle VV \rangle$  obtained for different volume fractions versus strain. The velocity auto-correlation functions fit well  $e^{-\dot{\gamma}t/\dot{\gamma}\tau}$  where  $\tau$  denotes the correlation time. d) Correlation strain  $\dot{\gamma}\tau$  versus  $\phi$  and corresponding linear fit  $\dot{\gamma}\tau = 0.62 - 1.08\phi$ .

(see figure 5.18d). We expect  $t_c$  to be of the order of  $\tau$  and thus write

$$t_c = \alpha\tau, \quad (5.19)$$

with  $\alpha$  an order one constant. Note that as shown in figure 5.14, this persistence time ( $\lesssim \dot{\gamma}^{-1}$ ) is much shorter than the observation period ( $\gtrsim 10\dot{\gamma}^{-1}$ ).

### 5.1.3. Multiplicative stretching process

With informations about the local shear rates and their persistence time at hand, we now explain the elongations of fluid material lines as a sequence of uncorrelated cycles of stretching. During the first cycle of duration  $t_c$ , a given segment of a material line is elongated by the local shear rate  $\dot{\gamma}_{loc,1}$  resulting in a stretching

$$\Delta\rho_1 = \sqrt{1 + (\dot{\gamma}_{loc,1}t_c)^2}/2, \quad (5.20)$$

where  $\dot{\gamma}_{loc,1}$  is a local shear rate which probability is prescribed by the distribution  $P(\dot{\gamma}_{loc}/\dot{\gamma})$ , cf. figure 5.17b. After the duration  $t_c$ , the local velocity field de-correlates and the local shear rate map is entirely redistributed. The segment then experiences a new local shear rate  $\dot{\gamma}_{loc,2}$ , which at  $t = 2t_c$  yields  $\rho = \Delta\rho_1\sqrt{1 + (\dot{\gamma}_{loc,2}t_c)^2}/2$ , and so on. The total elongation at time  $t$ , after  $N = t/t_c$  cycles, is the product of all the elementary elongations occurring at each

cycle  $\rho(t) = \prod_{i=1}^{N=t/t_c} \Delta\rho_i$ . The logarithm of this expression can be written as a sum

$$\ln \rho \equiv \sum_{i=1}^{t/t_c} \ln \Delta\rho_i = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{t/t_c} \ln[1 + (\dot{\gamma}_{\text{loc},i} t_c)^2 / 2]. \quad (5.21)$$

Since the elementary stretchings are independent, the distribution of  $\ln \rho$  is expected, by virtue of the central limit theorem, to be normal. This multiplicative stretching model thus predicts  $\rho$  to converge, after a few  $t/t_c$  cycles, to a log-normal distribution. This prediction is in agreement with the experimental results shown in figure 5.14b. The distribution of  $\ln \rho$ , *i.e.* the normal distribution, writes

$$P(x = \ln \rho) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}}, \quad (5.22)$$

with a non-zero mean

$$\mu \equiv \langle \ln \rho \rangle = \frac{\langle \ln \Delta\rho \rangle}{\dot{\gamma} t_c} \dot{\gamma} t, \quad (5.23)$$

and variance

$$\sigma^2 \equiv \langle \ln^2 \rho \rangle - \mu^2 = \frac{\langle \ln^2 \Delta\rho \rangle - \langle \ln \Delta\rho \rangle^2}{\dot{\gamma} t_c} \dot{\gamma} t. \quad (5.24)$$

Both the mean and the variance of the distribution of  $\ln \rho$  increase linearly with time. They also vary with the particulate volume fraction due to the  $\phi$ -dependence of  $\dot{\gamma}_{\text{loc}}$  and  $t_c$ . This variation with  $\phi$  is better appreciated by recasting equations (5.23) and (5.24) into

$$\mu = f(\phi) \dot{\gamma} t, \quad (5.25)$$

$$\sigma^2 = g(\phi) \dot{\gamma} t, \quad (5.26)$$

with  $f(\phi) \equiv \langle \ln \Delta\rho \rangle / \dot{\gamma} t_c$  and  $g(\phi) \equiv (\langle \ln^2 \Delta\rho \rangle - \langle \ln \Delta\rho \rangle^2) / \dot{\gamma} t_c$  only depending on  $\phi$ . Note that  $f(\phi)$  and  $g(\phi)$  are crucial quantities. Since the time dependency is known, they contain all the information about the asymptotic of the stretching laws in suspensions.

The multiplicative stretching model not only explains the origin of the log-normal distributions of elongations measured experimentally, but also the exponential increase of the mean elongation  $\rho$  and variance  $\sigma_\rho^2$  shown in figure 5.14. Indeed, the mean and variance of the (log-normal) distribution of  $\rho$  can be deduced from the mean and the variance of the (normal) distribution of  $\ln \rho$  following

$$\langle \rho \rangle = e^{(f+g/2)\dot{\gamma}t}, \quad (5.27)$$

and

$$\sigma_\rho^2 = (e^{g\dot{\gamma}t} - 1)e^{(2f+g)\dot{\gamma}t} \simeq e^{2(f+g)\dot{\gamma}t}, \quad (5.28)$$

the last simplification in  $\sigma_\rho^2$  becoming true after a few  $t_c$ .

Furthermore, the particulate volume fraction dependence of  $f(\phi)$  and  $g(\phi)$  can be computed from the persistence time  $t_c$  and the distribution of local shear rates, using equations (5.25) and (5.26) together with equations (5.23) and (5.24). In the experimental range  $20\% < \phi < 55\%$ , this yields

$$f(\phi) \simeq 0.104 + 0.298 \phi, \quad (5.29)$$

and

$$g(\phi) \simeq -0.069 + 0.810 \phi, \quad (5.30)$$

with the structure constant  $\alpha$ , set once and for all  $\phi$ , to 0.3 for computing  $\mu$ , and to 3.9 for computing  $\sigma^2$ . These rates  $f$  and  $g$  both increase with  $\phi$ , in agreement with the experimental trends. Note that this dependence on the volume fraction is non-trivial, since  $f$  and  $g$  result from the product of  $\dot{\gamma}_{\text{loc}}$  and  $t_c$ , which have opposite trends with  $\phi$  : the former increases whereas the latter decreases with increasing  $\phi$ .



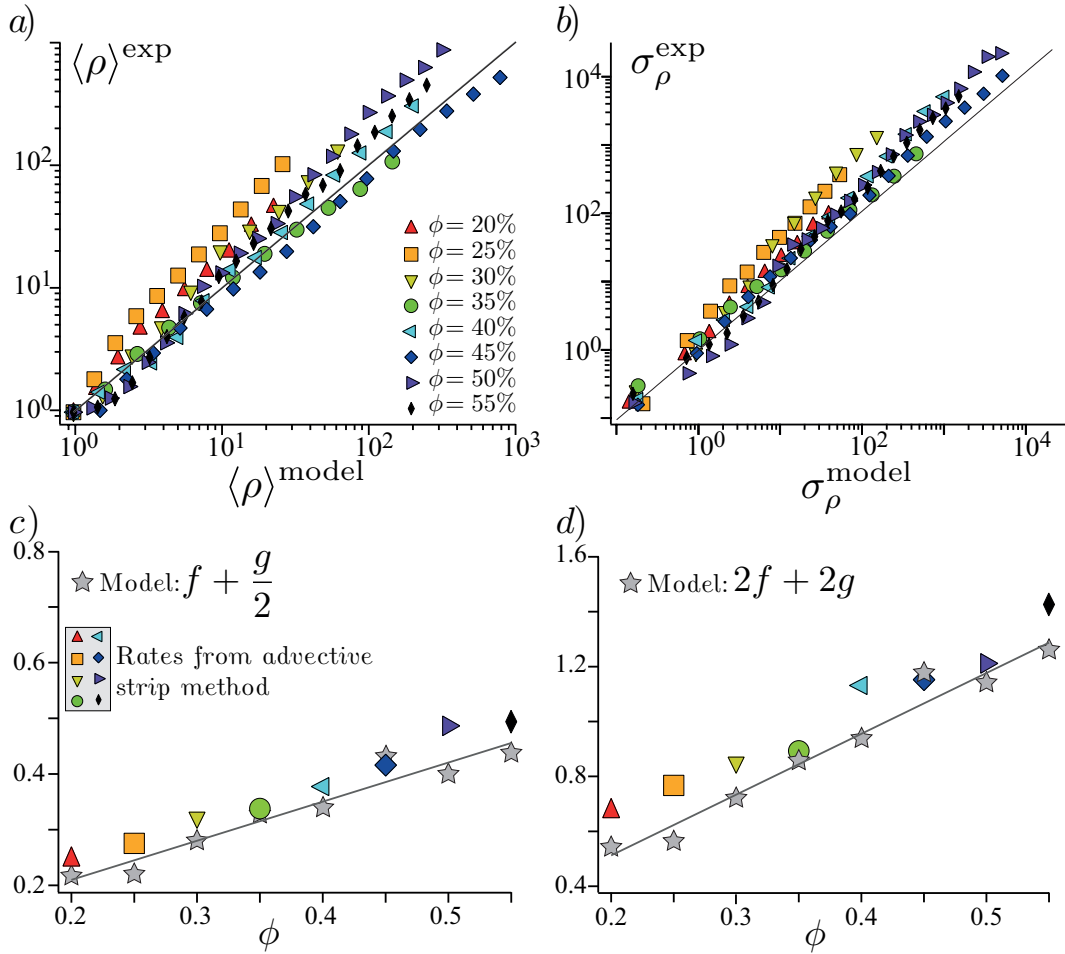


FIGURE 5.19 – Comparison between the experimental stretching (extracted from figure 5.15) and the multiplicative stretching model. (a-b) Mean elongation  $\langle \rho \rangle$  and standard deviation  $\sigma_{\rho}$ . The values from the advective strip method are plotted versus those predicted by the multiplicative stretching model. (c) Comparison between the exponential rates of the mean elongation  $\kappa_{\rho}$  obtained from the advective strip method (see figure 5.15a) and the model prediction  $f + g/2$  (5.27). (d) Comparison between the exponential rates of the variance of the elongation  $2\kappa_{\sigma_{\rho}}$  (see figure 5.15b) and the model prediction  $2(f + g)$  (5.28).

The predictions of the multiplicative stretching model are compared to the experimental stretching laws obtained by the Diffusive Strip Method in figure 5.19. The agreement is good for all volume fractions and all strains, which suggests that the multiplicative stretching model presented above captures the relevant mechanisms at the origin of the stretching laws.

## 5.2. Comments on the stretching process

Stretching of material elements in nature, may they be passive like in the present case, or with internal restoration forces like polymers (Shaqfeh & Koch [97], Afonso & Vincenzi [103]) may have different origins. The stochastic models to describe them usually present a net drift, and a random noise terms. The relative amplitudes of these two contributions are in our analysis given by  $f(\phi)$  and  $g(\phi)$ , respectively (see equations (5.25) and (5.26)). The first term sets the growth of  $\langle \ln \rho \rangle$ , while the second sets that of  $\langle \ln^2 \rho \rangle - \langle \ln \rho \rangle^2$ . At a

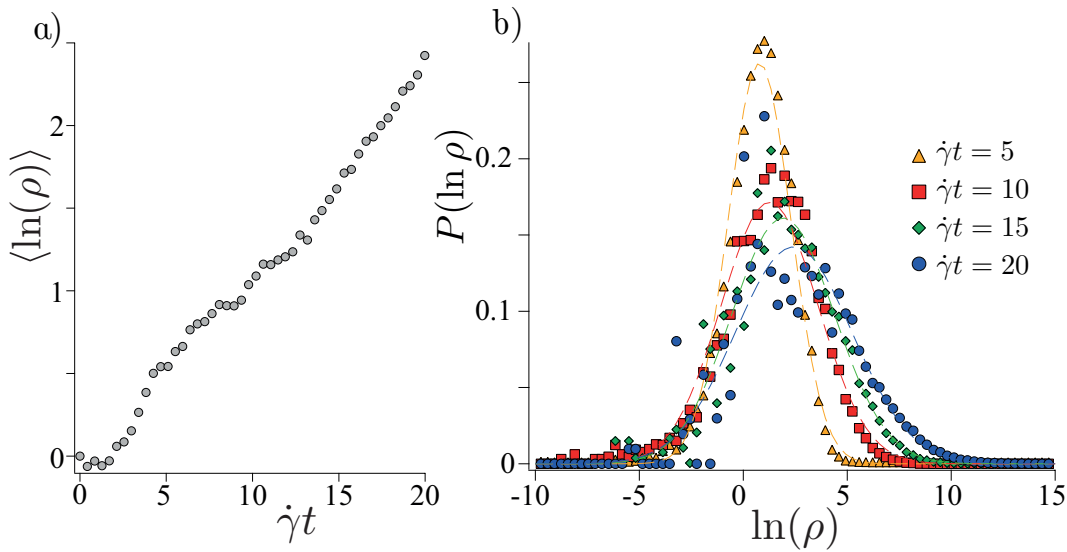


FIGURE 5.20 – a) Mean logarithm of the material line elongations,  $\langle \ln \rho \rangle$  versus  $\dot{\gamma}t$  for a suspension of volume fraction  $\phi = 35\%$ . b) PDF of the logarithm of the material line elongations  $P(\ln \rho)$  at successive times.

microscopic level, the growth of a given material line depends on its orientation with that of the local velocity gradient. The line length  $l(t)$  may increase or decrease depending on whether it is aligned with a diverging or compressive region of the flow. For instance, in a flow corresponding to the pure Brownian motion limit (Cocke [104]), for which  $\dot{\rho}/\rho = B(t)$  with  $B(t)$  a zero-mean, Delta correlated noise, i.e.  $\langle B(t) \rangle = 0$  and  $\langle B(t')B(t'') \rangle = (1/\tau_0)\delta(t' - t'')$ , these two contributions are balanced and the net line growth  $d \ln \rho(t)/dt = l(t)/l(t)$  is, on averaging over all directions, identically zero. In that case, representative of  $t_c \rightarrow 0$ , the material lines only grow through the contribution of the fluctuations of  $B(t)$ , which results in  $d \langle \ln \rho \rangle / dt = 0$ , and  $\langle (\ln \rho)^2 \rangle \sim 2t/\tau_0$ : the logarithm of the elongation diffuses.

In particulate suspensions, the situation is different since if the direction of the stretch indeed changes at random, it has a finite persistence time. In such case, it has been shown that material lines tend to preferentially align in the direction of elongations (see Cocke [105], Orszag [106], Girimaji & Pope [107], Duplat & Villermaux [108] and also equation 5.20). Thus, over an observation period larger than the (non-zero) correlation time  $t_c$ , we expect

$$\frac{d}{dt} \langle \ln \rho \rangle > 0. \quad (5.31)$$

This agrees with our measurements shown in figure 5.20(a): the finite persistence time of the stretching field results in a positive drift term:  $f(\phi) > 0$ . Although some material lines are subject to compression (see the negative values on the distribution of  $\ln \rho$  in figure 5.20(b)), on average, the logarithm of the elongations  $\langle \ln \rho \rangle$  increases with time. Material lines in particulate suspensions thus grow from the contribution of both a drift and a noise. The stretching process thus corresponds to a noisy multiplicative sequence of correlated motions, like the random Sine Flow (Meunier & Villermaux [63]), or porous media flows (Le Borgne *et al.* [3]). Porous media and sheared particulate suspensions have similar exponential stretching laws. This is true in 3D systems as in both cases the fluid trajectories are chaotic. Note however that for 2D systems the implications of steadiness change the picture qualitatively. In a 2D porous media, the flow is steady and there are only two degrees of freedom: the flow is thus not chaotic. The elongation of material lines in 2D synthetic porous media have been shown to grow algebraically rather than exponentially (Le Borgne *et al.* [3]). Conversely in

2D sheared suspensions, the time dependence of the flow allows the system to be chaotic (Metzger *et al.* [47]). One therefore expect to observe exponential stretching laws in sheared particulate suspensions also in purely 2D configurations.

### 5.3. Further remarks

We would like to point out certain limitations of the present study. First, the present findings and their analysis are restricted to the particulate volume fraction  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ , for which material lines in the suspending liquid stretch exponentially with strain. This is not necessarily the case outside from this range. In particular, as  $\phi \rightarrow 0$ , this exponential trend must cross-over to linear since the elongation of material lines in a simple shear is linear with strain. We however anticipate that the exponential trend could hold down to fairly low volume fractions but only emerge after increasingly large strains, since the velocity correlation time in the dilute limit should follow  $\tau \sim (\dot{\gamma}\phi)^{-1}$  and diverge at low  $\phi$ . Further investigations are needed to characterize this dilute regime ( $\phi < 20\%$ ).

Second, the PIV measurements performed here are two-dimensional and provide the fluid velocity projected in the  $(xy)$  plane only. They therefore neglect part of the stretching of the material lines, namely that involving deformations in the vorticity direction ( $z$ ). However, we believe that they resolve the stretching mechanism and most of its magnitude for the following reasons : i) these measurements resolve the fluid displacements in the gradient direction ( $y$ ), which is the only direction for which displacements couple with the main shear flow to produce an enhance stretching. The fluctuations in the vorticity direction are thus expected to produce less stretching than those occurring in the gradient direction. ii) Particles in a shear flow rotate mainly about the vorticity axis thereby inducing fluid disturbances mostly in the velocity-gradient plane, which we consider. Here again, the effects of the velocity disturbances induced by the particle rotation should be smaller in the vorticity direction than those occurring in the velocity-gradient plane. iii) More quantitatively, the stretching rates  $f + g/2$  predicted by the present model based on 2D data are in good agreement with the largest Lyapunov exponents obtained from 3D Stokesian simulations, see figure 5.21. From the above considerations, it is likely that the mechanisms at the origin of the scalar dispersion, stretching and subsequent mixing are well characterized by the present measurements, even though those are limited to the information contained in the  $xy$  plane.

Third, as already mentioned in section 5.5, the stretching of material lines is exponential at every scale, but the stretching of a material blob with thickness  $s_0$  is expected to follow that of material lines only if its thickness is smaller than the correlation scale of the fluid motion, which is of order  $d$  (in the other case, the blob is first essentially stretched by the macroscopic shear  $\dot{\gamma}$  until  $s \leq d$ ). In the following, we will therefore only consider the relevant case  $s_0 \leq d$ .

The latter considerations have important consequences on the estimation of the blob thickness  $s$ , hence on the mixing time that we will address in the next section. For an arbitrary elongation  $w/w_0$  in the vorticity direction ( $z$ ), mass conservation gives  $s_0 l_0 w_0 = s(t) l(t) w(t)$ . However, in light of the above discussion, the flow is assumed to be two dimensional with  $w/w_0 \ll l/l_0$ . Mass conservation thus results in

$$s_0 l_0 = s(t) l(t). \quad (5.32)$$

Using direct image analysis, we have checked that this is experimentally verified. A blob with initial surface  $s_0 l_0$  being converted into a strip with length  $l(t)$  and thickness  $s(t)$  indeed obeys, before it starts mixing, to equation (5.32), suggesting that the flow is indeed area preserving.

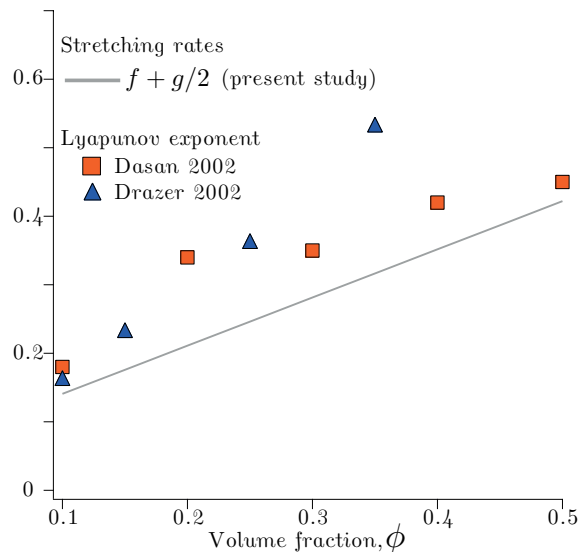


FIGURE 5.21 – Comparison between the stretching rates obtained in the present study and the largest Lyapunov exponent obtained from 3D Stokesian dynamics simulations (Dasan *et al.* [96], Drazer *et al.* [42]).

## 6. Implications for mixing

In such area preserving flow, the thickness  $s(t)$  of a distorted blob decreases in inverse proportion of its length  $l(t)$  according to equation (5.32). As recalled in the introduction, the mixing time for a given blob portion of thickness  $s$  is reached when its compression rate  $-\dot{s}/s$  is balanced by its rate of diffusive broadening  $D/s^2$ . At that time, called the mixing time, the scalar concentration carried by that portion of the blob starts to significantly decay *i.e.*, mix. Since in particulate suspensions  $\rho = l(t)/l_0 = e^{\kappa\dot{\gamma}t}$ , the mixing time writes  $t_{\text{mix}} \simeq \dot{\gamma}^{-1} \ln(\kappa Pe)/(2\kappa)$ .

We also found that the logarithm of the elongations of an ensemble of such material lines is normally distributed with a mean and a variance growing linearly with time following  $\mu = \langle \ln \rho \rangle = f(\phi)\dot{\gamma}t$  and  $\sigma^2 = g(\phi)\dot{\gamma}t$  (see equations (5.25) and (5.26), respectively). These results are illustrated in figure 5.22a. Since, similarly to the logarithm of the elongations, the stretching rates,  $\kappa\dot{\gamma} = \ln \rho/t$  are normally distributed, the median mixing time, obtained for the mean stretching rate, *i.e.* for  $\langle \kappa\dot{\gamma} \rangle = \langle \ln \rho \rangle/t = \mu/t = f(\phi)\dot{\gamma}$ , is

$$t_{\text{mix}}^{\text{med}} \approx \frac{1}{2f(\phi)\dot{\gamma}} \ln(f(\phi)Pe). \quad (5.33)$$

Considering a blob distorted in such a way that it samples all the possible elongations in the global statistics, the above estimate provides the time at which half of the blob has reached its mixing time. The logarithmic dependence of the mixing time on the Péclet number is different from that obtained in a simple shear flow (without particles) for which  $\rho \simeq \dot{\gamma}t$  yields  $t_{\text{mix}} \simeq \dot{\gamma}^{-1} Pe^{1/3}$ . Introducing particles in a viscous fluid therefore becomes more and more efficient at reducing the mixing time as the Péclet number increases. In the present study, the Péclet number is  $Pe \sim 10^6$ . The median mixing time for  $\phi = 35\%$  is thus  $t_{\text{mix}}^{\text{med}} \simeq 30/\dot{\gamma}$ , which has to be compared with  $t_{\text{mix}} \simeq 100/\dot{\gamma}$  in a pure shear flow. Note that varying the volume fraction from 20% to 55% increases  $f(\phi)$  only by a typical factor of 2, which decreases the median mixing time by about the same moderate factor.

In practical situations, mixing half of the scalar may not be the relevant question, precisely because in particulate suspensions, elongations are, as seen in figure 5.12, broadly

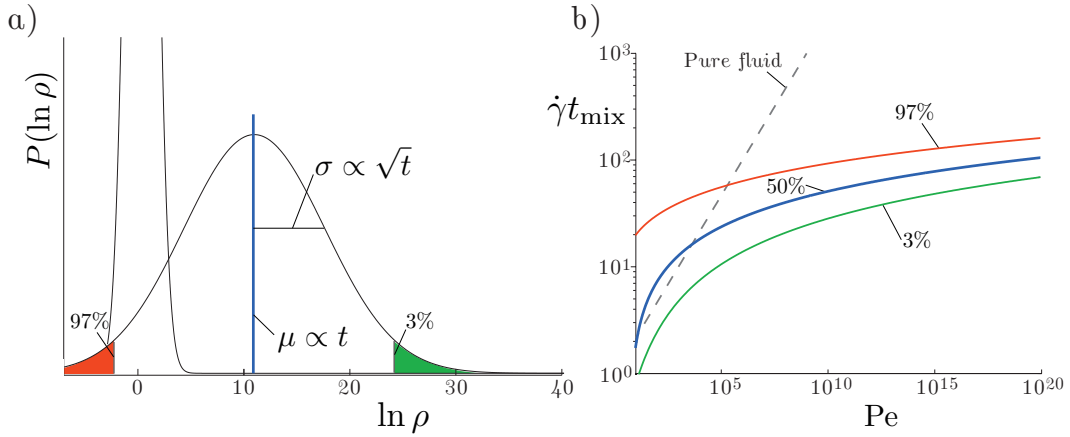


FIGURE 5.22 – a) Evolution of the distribution  $P(\ln \rho)$  of the logarithm of the material line elongations in a particulate suspension. The mean of the distribution  $\mu \sim t$  and its standard deviation  $\sigma \sim \sqrt{t}$ . b) Dimensionless mixing times  $\dot{\gamma}t_{\text{mix}}$  in a suspension ( $\phi = 35\%$ ) as a function of  $Pe$ . The median (blue line), the most stretched  $t_{\text{mix}}^{3\%}$  (green line), and the less stretched  $t_{\text{mix}}^{97\%}$  (red line) dimensionless mixing times can be compared to the dimensionless mixing time  $\sim Pe^{1/3}$  expected in a pure fluid (dashed line).

distributed. So are mixing times. To address this point, we estimate, for the same conditions as previously, the mixing times for the portions of the blob that undergo the largest and the lowest stretching rates respectively, *i.e.* the mixing times corresponding to both tails of the distribution (highlighted in figure 5.22a). The 3% most strongly stretched portions of the blob are bounded by  $\ln \rho = \mu + 2\sigma$ . The expression  $-\dot{s}/s = D/s^2$  results in  $2f(\phi)\dot{\gamma}t + 4\sqrt{g(\phi)}\dot{\gamma}t = \ln[(f(\phi) + \sqrt{g(\phi)/\dot{\gamma}t})Pe]$ , which yields the mean field mixing time  $t_{\text{mix}}^{3\%} \simeq 14/\dot{\gamma}$ . On the other end of the distribution, the less stretched portions of the blob, bounded by  $\ln \rho = \mu - 2\sigma$ , reach their mixing time at  $t_{\text{mix}}^{97\%} \simeq 64/\dot{\gamma}$ , later than if it were sheared in a pure fluid. In figure 5.22b, the median (blue line), the most stretched  $t_{\text{mix}}^{3\%}$  (green line), and the less stretched  $t_{\text{mix}}^{97\%}$  (red line) dimensionless mixing times are plotted as a function of the Péclet number. This shows that if the concern is to mix essentially all the scalar, large Péclet numbers ( $\gg 10^5$ ) are required before mixing in a suspension becomes more efficient than in a pure fluid. Persistent poorly stretched regions are deterring. The relative width  $\sigma/\mu$  of the stretching rate distribution decreases in time like  $t^{-1/2}$  but this only mildly decreases the spreading of the mixing times as  $Pe$  increases, since  $t_{\text{mix}} \propto \ln Pe$ . For instance, at  $Pe = 10^{20}$ , the mixing times remain fairly distributed with  $t_{\text{mix}}^{97\%}/t_{\text{mix}}^{3\%} > 2$ .

Finally, the results obtained on the stretching laws must be related to the overall dispersion of the blob. In a random flow, line stretching, and dispersion, are two different things : because the extent of the area occupied by the blob grows more slowly than the area where the scalar constitutive of the blob is dispersed, the blob will at some point unavoidably reconnect and merge by overlapping onto itself (Duplat & Villermaux [88]). Let us see how : after the mixing time, a scalar blob with length growing like  $l(t) = l_0 e^{\dot{\gamma}t}$  has a transverse concentration profile whose width is confined to the Batchelor scale  $\sqrt{D/\dot{\gamma}}$ . The area  $\mathcal{A}$  occupied by the scalar is thus  $\mathcal{A} = \sqrt{D/\dot{\gamma}} l_0 e^{\dot{\gamma}t}$ , growing exponentially in time. Now, the spatial support of the blob undergoes a dispersion induced by the particle effective dispersion coefficient  $D_{\text{eff}} \approx \dot{\gamma}d^2/\phi$  (Eckstein *et al.* [20]). The total area explored by the blob of dye, within which the blob folds, is typically (see also Taylor [70] in a related, but different context),  $\Sigma \sim (l_0 + \sqrt{D_{\text{eff}}t}) \times (s_0 + \sqrt{D_{\text{eff}}t})\dot{\gamma}t \sim d^2(\dot{\gamma}t)^2$ , growing algebraically in time. Because an exponential will always beat a power law, there will necessary be a time for which the area occupied by the scalar overcomes the one visited by the blob (*i.e.*  $\Sigma/\mathcal{A} < 1$ ), and

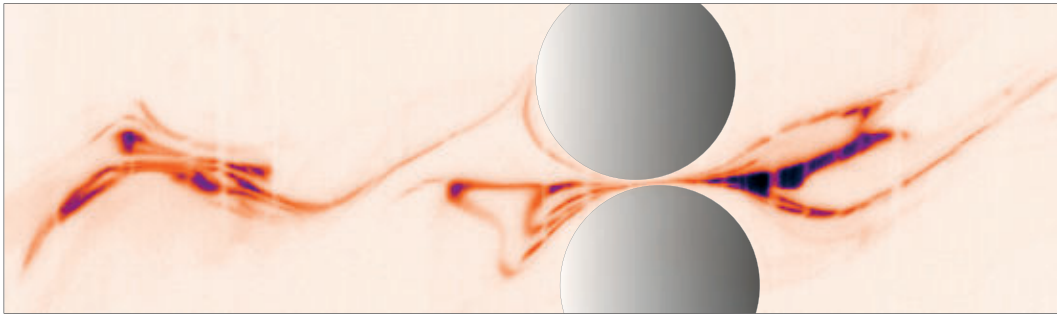


FIGURE 5.23 – Picture illustrating the complexity of folding of the stretched blob of dye and the potential interaction (merging) of nearby filaments.

from that instant of time, overlaps of the folded scalar filaments will be unavoidable. Such an event is illustrated in figure 5.23. These overlaps will affect the mixing process and the route taken by the mixture evolution is then completely different. This aspect, and more generally all aspects regarding the concentration content of the mixture and its evolution, are left for future research.

## 7. Conclusions

Motivated by the need to understand on a firm basis the mixing properties of particulate flows, we have provided a complete characterization of the kinematics of stretchings and consecutive elongations of materials lines in non-Brownian particulate suspensions under a simple macroscopic shear. Our observations rely on high resolution PIV measurements of the interstitial fluid velocity field, and our findings are as follows :

- i) Following the Diffusive Strip Method of Meunier & Villermaux [63], we used the experimentally measured velocity fields to numerically advect passive segments in order to reconstruct the stretching histories of fluid material lines. In agreement with previous theoretical predictions and simulation results, we observe that adding particles in a shear flow changes the very nature of the stretching laws from linear to exponential in strain. The growth rate for the mean elongation are found to closely agree with the largest Lyapunov exponent obtained from 3D numerical simulations (Dasan *et al.* [96], Drazer *et al.* [42]). Besides the mean, our analysis also provides the full statistics of the material lines elongation : the variances of the elongations also grow exponentially in strain and the distributions of elongations converge toward log-normals. This statistics of elongation was characterized for a large range of volume fractions  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ .
- ii) Using the same velocity fields, we determined the distribution of the local shear rates intensities and their persistence time. From these, we have shown how the fluid material lines undergo a *multiplicative stretching process* consisting in a noisy multiplicative sequence of correlated motions. We also discussed the important role of the finite correlation time of the velocity field. The model quantitatively predicts the evolution of the mean and the variance of the elongations of the fluid material lines as well as their evolution towards a log-normal distribution.
- iii) We have discussed the importance of this characterization of the flow kinematics to understand how mixing proceeds in sheared particulate suspensions. The exponential stretching results in a mixing time increasing logarithmically with the Péclet number. Moreover, the broad distribution of stretching rates implies a broad distribution of mixing times. The stochastic nature of the stretching process thus allows stretching rates that are smaller than in a pure shear flow. However, our analysis shows that the

occurrence of such events becomes negligible at large Péclet number ( $\gg 10^5$ ) as mixing occurs at larger deformations.

The present study opens the way for a complete description of the mixing process occurring in sheared particulate suspension. In particular, it allows the prediction of the evolution of the concentration distribution  $P(C, t)$  (Duplat *et al.* [95]). A quantitative verification of these predictions requires a specific experimental device that resolves the Batchelor scale  $s(t_{\text{mix}})$  which corresponds to the transverse dimension of the filaments at the time when diffusion significantly modifies the concentration levels. Such challenging measurements will be addressed in future studies.

\*  
\* \*

We would like to thank P. Meunier for letting us use his DSM code, S. Dagois Bohy, S. Gallier, E. DeGiuli, M. Wyart, O. Pouliquen for having thoughtful discussions and P. Cervetti, S. Noel and S. Martinez for helping us build the experimental set-up. This work was supported by ANR JCJC SIMI 9 and by the Labex MEC ANR-10-LABX-0092 et ANR-11-IDEX-0001-02.

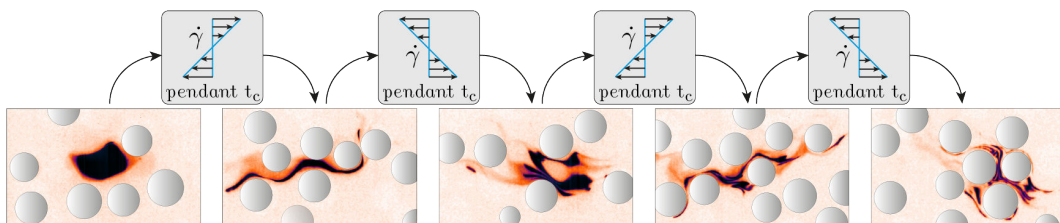




## 6.1 Conclusion

L'objectif de cette thèse était d'élucider, à l'échelle de la taille des particules, les mécanismes à l'origine de l'intensification des transferts ayant lieu dans les suspensions de particules non-inertiennes et non-Browniennes. Pour cela, j'ai utilisé et développé davantage les techniques expérimentales permettant de rendre les suspensions transparentes et d'y effectuer des visualisations directes du processus de mélange. Lorsqu'une suspension est soumise à un cisaillement, les collisions successives entre les particules génèrent un mouvement d'agitation au sein du fluide. Quelques études, toutes basées sur des mesures macroscopiques d'un coefficient effectif de diffusion, avaient mis en évidence que cette agitation des particules a pour effet d'augmenter significativement les propriétés de transfert dans la direction transverse à l'écoulement [19, 53, 54]. Dans cette thèse, l'origine de ce processus d'intensification a pu être caractérisée pour la première fois à l'échelle locale. Les configurations expérimentales choisies et les observations expérimentales directes nous ont permis de proposer des modèles simples, basés sur des mécanismes élémentaires, permettant de décrire de façon quantitative les processus observés.

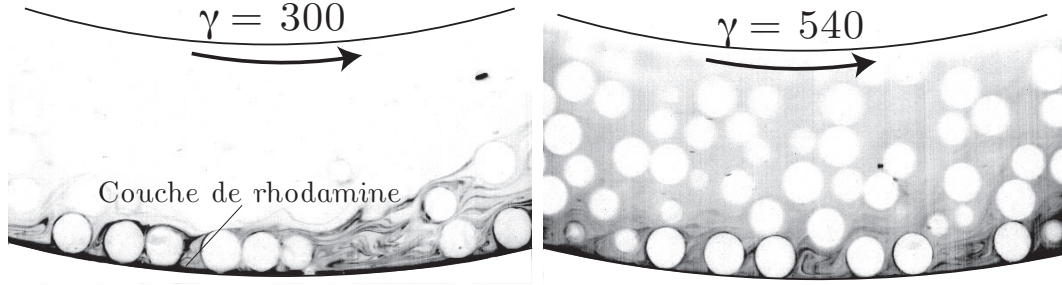
### — L'expérience de Taylor revisitée



Nous avons d'abord étudié la configuration emblématique de Taylor dans laquelle une goutte de colorant est soumise à un écoulement périodique. Dans ce cas, on observe qu'au-delà d'une amplitude de déformation critique, la présence de particules dans le fluide brise la réversibilité du système. La goutte de colorant est alors rapidement dispersée dans le milieu environnant. Cette évolution peut être bien décrite par un processus de diffusion dont le coefficient est donné par celui caractérisant l'agitation des particules. A forte amplitude de

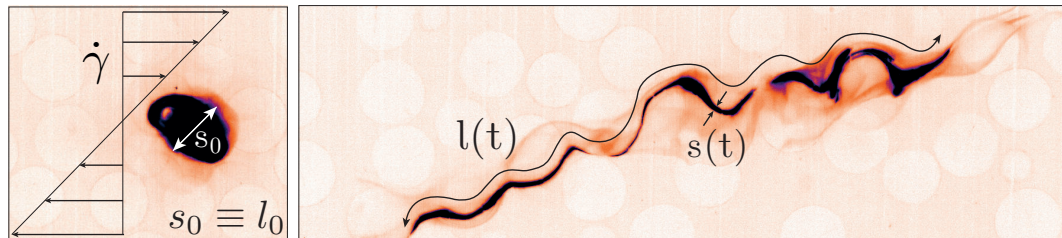
déformation, ce coefficient peut être 4 ordres de grandeur supérieur au coefficient de diffusion moléculaire du colorant.

— **Effet des parois**



Nous avons mis en évidence un mécanisme important appelé ‘rolling-coating’ qui permet de comprendre le transfert d’un scalaire de la paroi vers le bulk de la suspension. Bien que l’agitation translationnelle des particules soit frustrée dans cette zone, la rotation des particules induit un transport à flux constant du scalaire de la paroi vers le bulk de la suspension. Ce mécanisme a pour effet principal de court-circuiter la couche limite diffusive proposée par Wang *et al.* [54]. Après la première couche de particules, l’évolution des profils de concentration peut être décrite avec une condition limite de flux constant (conséquence du ‘rolling-coating’) et un profil de diffusion effectif qui croît linéairement avec la distance à la paroi. La croissance linéaire du coefficient de diffusion a été déterminée par la mesure des fluctuations de vitesse du fluide interstitiel. La solution analytique proposée, basée sur une fonction gamma incomplète, prédit quantitativement l’évolution des profils de concentration mesurés expérimentalement.

— **Lois d’étirement dans les suspensions cisillées**



Dans la dernière partie de cette thèse, j’ai abordé le processus de mélange par l’approche dite ‘lamellaire’. Cette approche consiste à caractériser le champ d’advection en déterminant les lois d’étirements. Dans le cas des suspensions, ces lois donnent une description statistique des étirements induits par les particules au sein du fluide interstitiel. La connaissance de ces lois est fondamentale pour comprendre et prédire le processus de mélange, car une fois celles-ci déterminées, on peut y coupler l’effet de la diffusion moléculaire afin de prédire l’ensemble du processus d’homogénéisation : temps de mélange, évolution des distributions de concentration, etc...

Pour déterminer les lois d’étirements dans les suspensions de particules cisillées, nous avons caractérisé le champ de vitesses du fluide interstitiel en réalisant des mesures PIV haute résolution. Ces mesures ont nécessité un ajustement précis de l’indice optique à la quatrième décimale entre les deux phases. A partir de ces champs de vitesses et en s’appuyant

sur la *Diffusive Strip Method* développée par Meunier & Villermaux [63], nous avons pu reconstruire l'historique d'étirement d'un large ensemble de lignes matérielles de la phase fluide. Cette utilisation de la *Diffusive Strip Method* est novatrice car elle a pour la première fois été appliquée sur un champ de vitesses expérimental. La procédure que nous avons employée ouvre un champ d'application important à cette méthode qui peut à présent être étendue à un grand nombre de configurations pour lesquelles la forme analytique du champ de vitesses n'est pas connue.

Un résultat majeur de cette thèse est que la présence des particules dans le fluide change la nature des lois d'étirement. Celles-ci passent de linéaires dans un fluide pur, à exponentielles en présence de particules et cela sur une large gamme de fraction volumique  $20\% \leq \phi \leq 55\%$ . Nous avons montré que la moyenne  $\langle \rho \rangle$  et l'écart type  $\sigma_\rho$  des étirements croissent exponentiellement avec le temps, et que la distribution des étirements converge vers une distribution log-normale. La qualité des champs de vitesses mesurés par PIV nous a par ailleurs permis d'extraire deux grandeurs très importantes : la distribution des taux de cisaillements locaux ainsi que leur temps de persistance. A partir de ces deux quantités, on peut décrire l'historique d'étirement des lignes matérielles comme un processus multiplicatif qui consiste en une succession de cycles d'étirements décorrélés les uns des autres. Ce modèle simple prédit quantitativement l'évolution de la moyenne, de la variance, et la forme log-normale des distributions d'étirements mesurées expérimentalement.

Cette caractérisation statistique de la cinématique de déformation de notre système donne les fondements nécessaires pour une description complète du processus de mélange ayant lieu dans les suspensions de particules cisailées à bas nombre de Reynolds. Nous avons en particulier décrit la statistique des temps de mélange qui résulte de la forte inhomogénéité du champ d'advection. Il est communément accepté que les suspensions sont le siège d'une forte intensification des transferts lorsqu'elles sont soumises à un cisaillement. Cette description n'est en fait pertinente que d'un point de vue macroscopique ou encore en terme de dispersion effective. La description fine du processus de mélange, offerte ici par l'approche 'lamellaire', montre que la situation n'est pas si simple. En effet certaines régions du fluide, fortement étirées, atteignent leur temps de mélange très rapidement. En revanche, nous avons montré que tant que le nombre de Péclet est inférieur à  $\sim 10^6$ , les régions qui sont sujettes à une compression peuvent atteindre leur temps de mélange plus tardivement que dans un fluide pur cisailé. Le processus de mélange qui a lieu dans les suspensions est très fortement inhomogène. Cet aspect, très important pour la compréhension globale du processus, a été mis en évidence et quantifié au cours de cette thèse.

## 6.2 Perspectives

La perspective immédiate et principale de cette thèse est la prédiction et la mesure de l'évolution des distributions de concentration  $P(C, t)$  d'un scalaire initialement ségrégué dans les suspensions cisailées. Nous avons à notre disposition tous les outils nécessaires pour déterminer cette évolution qui pourra être obtenue par trois approches complémentaires : analytique, numérique, et expérimentale.

Comme on l'a évoqué plus haut, les lois d'étirement qui ont été déterminées dans cette thèse donnent les fondements théoriques nécessaires pour prédire analytiquement l'évolution de  $P(C, t)$ . En fait, dans le cas d'une distribution d'étirements log-normale, caractéristique des processus multiplicatifs, la forme analytique de  $P(C, t)$  est connue [63, 95]. Cette formulation se place néanmoins dans le cadre dit du "*solitary strip*" pour lequel on ne considère pas les repliements des filaments sur eux-mêmes et donc les effets de la coalescence. Ces effets, qui comme l'illustrent la Figure 5.23 et le film Chapitre5-Movie3 affectent significativement la distribution de concentration, devront être pris en compte pour décrire l'évolution de  $P(C, t)$ . Pour réaliser cette correction, plus délicate car elle nécessite de connaître à chaque instant le nombre de filaments qui ont coalescé, on pourra s'inspirer du travail effectué par Le Borgne *et al.* dans les milieux poreux [3, 109].

L'évolution de  $P(C, t)$  peut aussi être déterminée numériquement. En effet, la *Diffusive Strip Method* permet non seulement de reconstituer l'historique d'étirement d'un filament, mais également de reconstruire dans un second temps, et cela quelque soit la valeur du coefficient de diffusion moléculaire, le champ de concentration autour du filament. Cette procédure numérique de reconstruction à *posteriori* prend en compte la coalescence et permettra d'étudier l'influence du nombre de Péclet en variant la valeur du coefficient de diffusion moléculaire.

L'évolution de  $P(C, t)$  doit enfin être mesurée expérimentalement. Ces mesures ne sont pas simples. En ce qui concerne notre dispositif, trois difficultés expérimentales majeures ne nous permettent pas de proposer des résultats quantitatifs sur l'évolution de la distribution de concentration. Ces difficultés, qui seront détaillées dans la suite, viennent de notre résolution spatiale limitée, d'effets de photo-bleaching, et de la formation de 'halos' liés probablement au chevauchement des spectres d'émission et d'absorption du fluorochrome employé. Pour s'affranchir de ces effets, un montage expérimental dédié à la mesure des distributions de concentration est en cours de développement. Je vais présenter ce dispositif expérimental dans la suite, en précisant comment l'on envisage de contourner chacune des difficultés évoquées ci-dessus.

## 6.2.1 Mesure de l'évolution des distributions de concentration dans les suspensions cisailées

### 6.2.1.1 Le problème de la résolution spatiale

Le premier blocage expérimental est lié à la résolution spatiale des images qui, comme nous allons le voir, n'est pas suffisante dans les expériences qui ont été présentées dans cette thèse pour résoudre l'échelle spatiale caractéristique du processus de mélange. Comme nous avons utilisé des particules de 2 mm de diamètre, les dimensions des dispositifs expérimentaux sont relativement grandes et par conséquent la résolution typique des images n'est que de  $\approx 7 \mu\text{m}/\text{pixel}$ . Ces particules de grande taille ont été choisies pour leur homogénéité et leur très bonne qualité de surface nécessaire pour obtenir des suspensions bien transparentes. L'inconvénient est que pour ces échelles, il est difficile de voir l'effet de la diffusion moléculaire. En effet, pour une suspension telle que  $\text{Pe} \sim 10^6$  et  $\phi = 35\%$  (traitée dans le Chapitre 5), le temps de mélange médian est  $t_{\text{mix}}^{\text{med}} = \ln(f(\phi)\text{Pe})/2\dot{\gamma}f(\phi) = 54/\dot{\gamma}$ . A cet instant, une goutte de diamètre initiale typique  $s_0 \approx 2 \text{ mm}$ , a une dimension transverse  $s(t_{\text{mix}}^{\text{med}}) = s_0 e^{-f(\phi)\dot{\gamma}t_{\text{mix}}^{\text{med}}} = s_0/\sqrt{f(\phi)\text{Pe}} = 5.3 \mu\text{m}$ . Cette échelle spatiale, aussi appelée échelle de Batchelor, correspond à la largeur des filaments pour laquelle l'effet de la diffusion moléculaire devient significatif et pour laquelle les niveaux de concentration au sein des filaments commencent à diminuer. L'échelle de Batchelor ici est typiquement du même ordre que la résolution spatiale. Cela pose un sérieux problème pour mesurer convenablement les niveaux de concentration, car dès lors que les filaments deviennent plus fins que la taille des pixels, la mesure est forcément biaisée.

Villermaux & Duplat [110] ont proposé que l'échelle spatiale qui porte les niveaux de concentration n'est pas l'échelle de Batchelor, mais une échelle plus grande, dite de *coarse-ning*, caractéristique de la largeur des amas de filaments. Cela étant, bien que les repliements du filament sur lui même deviennent inévitablement de plus en plus nombreux (cf. Chapitre 5), la goutte de colorant reste principalement allongée dans la direction de l'écoulement moyen et on peut observer un grand nombre de filaments isolés. Par conséquent, la résolution de l'échelle de Batchelor est nécessaire pour pouvoir déterminer expérimentalement l'évolution des distributions de concentration. Pour obtenir des images avec une résolution spatiale suffisante permettant de résoudre l'échelle de Batchelor, nous pouvons : *i*) diminuer le nombre de Péclet afin d'augmenter l'échelle de Batchelor *ii*) augmenter la résolution spatiale des images. Basé sur ces remarques, nous avons conçu un nouveau dispositif expérimental.

Les deux modifications principales du nouveau montage expérimental dédié à la mesure

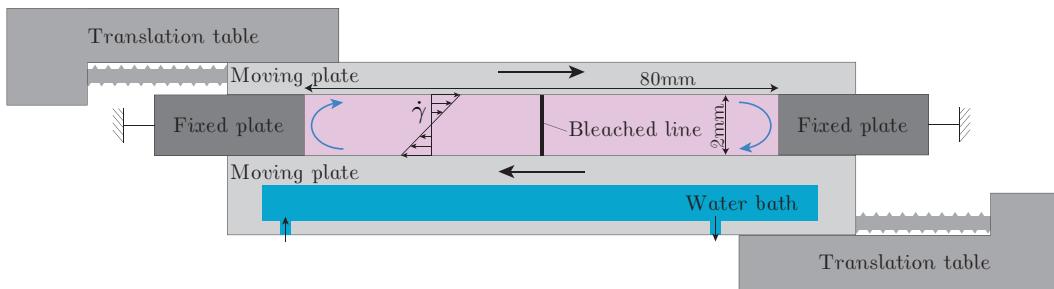


FIGURE 6.1 – Schéma du nouveau dispositif expérimental dédié à la mesure de l'évolution des distributions de concentration.

de la distribution de concentration sont : *i*) de modifier les échelles spatio-temporelle afin de diminuer le nombre de Péclet  $Pe = \dot{\gamma} d^2 / D_0$ , et *ii*) d'utiliser un objectif macroscopique (Leica Z16 APO A) permettant d'obtenir des images de très haute résolution ( $\approx 1 \mu\text{m}/\text{pixel}$ ). Le dispositif expérimental, présenté schématiquement Figure 6.1, consiste en une version petite échelle ( $1 : 10^{\text{ème}}$ ) de la cellule de cisaillement plan-plan. Notons que les lois d'étirement restent les mêmes car à bas nombre de Reynolds, la cinématique de déformation est invariante d'échelle. Ici, plutôt que d'employer une courroie, l'écoulement de cisaillement linéaire est généré par deux parois mobiles mises en mouvement par deux tables de translation de haute précision (PI M-403.4 PD). Grâce aux deux parties fixes de part et d'autre de la cellule, le fluide recircule dans la chambre et présente dans la partie centrale un profil de cisaillement linéaire bien contrôlé. Le dispositif est équipé d'un circuit d'eau fermé alimenté par un bain cryothermostaté permettant de contrôler sa température afin d'ajuster l'iso-indice optique. Le gap est de 2 mm et la longueur de la cellule de 80 mm. Chacune des plaques peut être translattée sur une distance de 40 mm autorisant une déformation maximum de  $\gamma_{\text{max}} = 40$ . On utilisera cette fois des particules de diamètre  $\approx 100 \mu\text{m}$ .

Les nouvelles dimensions du système étant petites, l'injection contrôlée d'une goutte de colorant est particulièrement difficile. Pour contourner ce problème, nous avons décidé d'employer une technique non-intrusive appelée FRAP (*Fluorescence Recovery After Photo-bleaching*) [59], déjà présentée § 2.3.2. Cette fois l'ensemble du fluide est dopé en rhodamine 6G et on vient 'bleacher' localement un plan du fluide en l'impactant avec une nappe laser verticale de forte intensité, cf. Figure 6.2 (a). Une fois la fluorescence inhibée par 'bleaching', le faisceau issu de la diode laser (2W) est dévié pour suivre un second trajet optique permettant la visualisation. On utilise alors le miroir tournant pour générer une nappe laser verticale perpendiculaire au plan bleaché, cf. Figure 6.2 (b). Dans le plan de visualisation, le plan préalablement bleaché apparaît alors comme une ligne de faible intensité (noire sur les images), cf. film Chapitre6-Movie1. Cette technique non-intrusive de bleaching permet de bien contrôler la forme initiale du blob qui est cette fois en quelque sorte un blob 'inversé' car il y a de la rhodamine partout dans le fluide sauf dans la région délimitée par le blob.

Notons que pour diminuer le nombre de Péclet, nous avons aussi tenté de réaliser des expériences en employant une mixture de Thiocyanate d'Ammonium  $\text{NH}_4\text{SCN}$  (39.27 %m), de Glycérol (36.11 %m), et d'eau (24.62 %m). Cette mixture a été utilisée par Bailey & Yoda [111] afin d'obtenir une suspension peu visqueuse ( $\sim 10^{-2} \text{Pa.s}$ ), iso-dense et iso-indice optique de particules de PMMA. L'idée ici était d'augmenter le coefficient de diffusion moléculaire (et donc de diminuer le nombre de Péclet) en utilisant un fluide moins visqueux. Cela étant, pour un fluide si peu visqueux la technique de photo-bleaching ne peut pas être utilisée car elle génère des courants de convection thermique qui perturbe la forme du blob. Nous avons donc finalement utilisé le même fluide que dans les expériences précédentes, cf. § 2.1.2.1.

Ce nouveau dispositif nous permet d'explorer une large gamme du nombre de Péclet ( $20 \leq Pe \leq 10^5$ ) simplement en modifiant la vitesse d'avancée des tables de translation. Pour

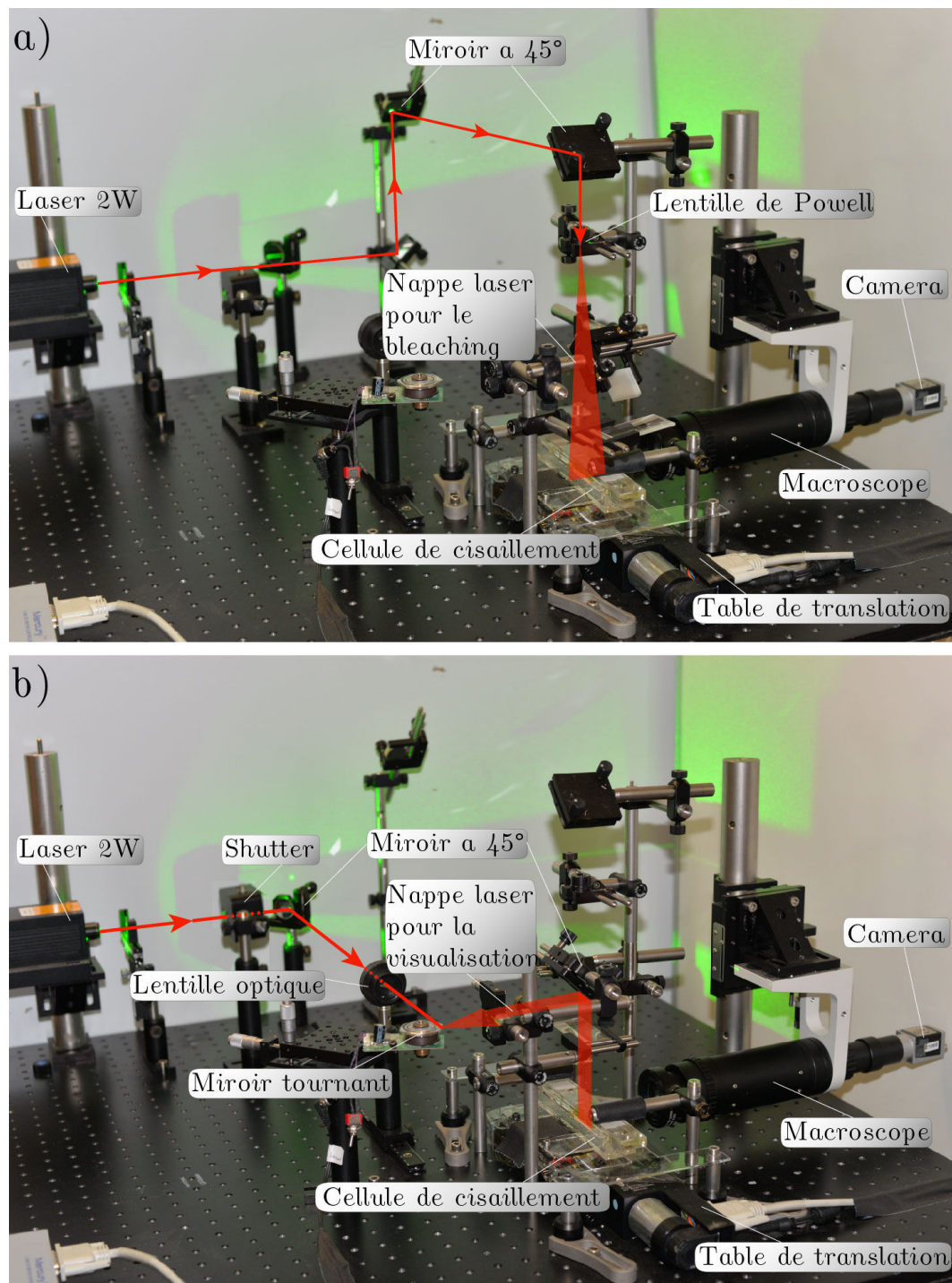


FIGURE 6.2 – Photo du nouveau montage expérimental en configuration a) de ‘bleaching’ pour générer le blob initial, b) de visualisation pour mesurer l’évolution des distributions de concentration.

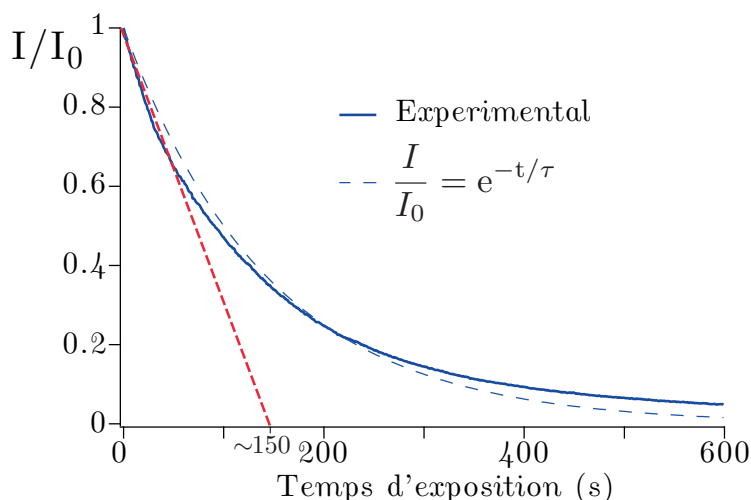


FIGURE 6.3 – Intensité ré-émise par fluorescence pour une goutte de rhodamine 6G illuminée de façon continue. L’intensité ré-émise décroît exponentiellement à cause de l’effet de photobleaching.

un taux de cisaillement typique  $\dot{\gamma} = 5 \cdot 10^{-3} \text{s}^{-1}$  et en considérant un blob de largeur initiale  $s_0 = 100 \mu\text{m}$  (soit  $\text{Pe} = 350$ ), on peut estimer l’échelle de Batchelor médiane  $s(t_{\text{mix}}^{\text{med}}) \approx 16 \mu\text{m}$ . Ce nouveau montage expérimental, dont la résolution spatiale est  $\approx 1 \mu\text{m}/\text{pixel}$ , permet donc de résoudre l’échelle de Batchelor et devrait ainsi permettre de mesurer l’évolution des distributions des niveaux de concentration dans les suspensions cisailées.

### 6.2.1.2 Photobleaching par la nappe de visualisation

Le deuxième biais présent dans les expériences précédentes provient du bleaching résultant de l’illumination continue du fluide par la nappe laser de visualisation. En effet, la visualisation est réalisée en éclairant le plan de cisaillement par une nappe laser obtenue à partir d’une diode laser puissante (2W) ; comme nous l’avons vu dans le Chapitre 2, l’emploi d’une source laser de forte puissance permet d’obtenir des images de qualité. La contrepartie est que les molécules de fluorochrome émettent de moins en moins de lumière à cause du photo-bleaching. Pour illustrer ceci, observons l’évolution de l’intensité de lumière ré-émise par une goutte de rhodamine 6G ( $s_0 \approx 10^{-3} \text{m}$ ) en l’absence d’écoulement, cf. Figure 6.3. On observe une décroissance exponentielle de l’intensité, avec un temps caractéristique de  $\sim 150 \text{s}$  bien plus court que le temps caractéristique attendu si la goutte diffusait ( $s_0^2/D_0 \approx 10^7 \text{s}$ ). La diminution exponentielle des niveaux d’intensité résulte ici du photobleaching. Pour limiter au maximum cet effet dans le nouveau montage expérimental, les acquisitions d’images sont synchronisées avec un ‘shutter’ qui ne s’ouvre pour laisser passer le faisceau laser que le temps des acquisitions, cf. Figure 6.2. L’effet du photobleaching est alors atténué au point d’être négligeable et les niveaux de concentration sont ainsi directement proportionnels aux niveaux d’intensité des pixels des images.

### 6.2.1.3 Apparition de ‘halos’ : l’excitation du colorant contenu en dehors du plan de la nappe laser

Lorsqu’une goutte de colorant cisailée est illuminée par une nappe laser, on peut observer un ‘halo’ autour du filament de rhodamine, comme illustré sur la Figure 6.4 (a). Nous pensons que ce halo est une conséquence du chevauchement partiel des spectres d’émission et d’absorption de la rhodamine 6G, cf. Figure 6.4 (c). En étant excitées par la nappe laser, les molécules de fluorochrome dans le plan de visualisation émettent des photons dans toutes

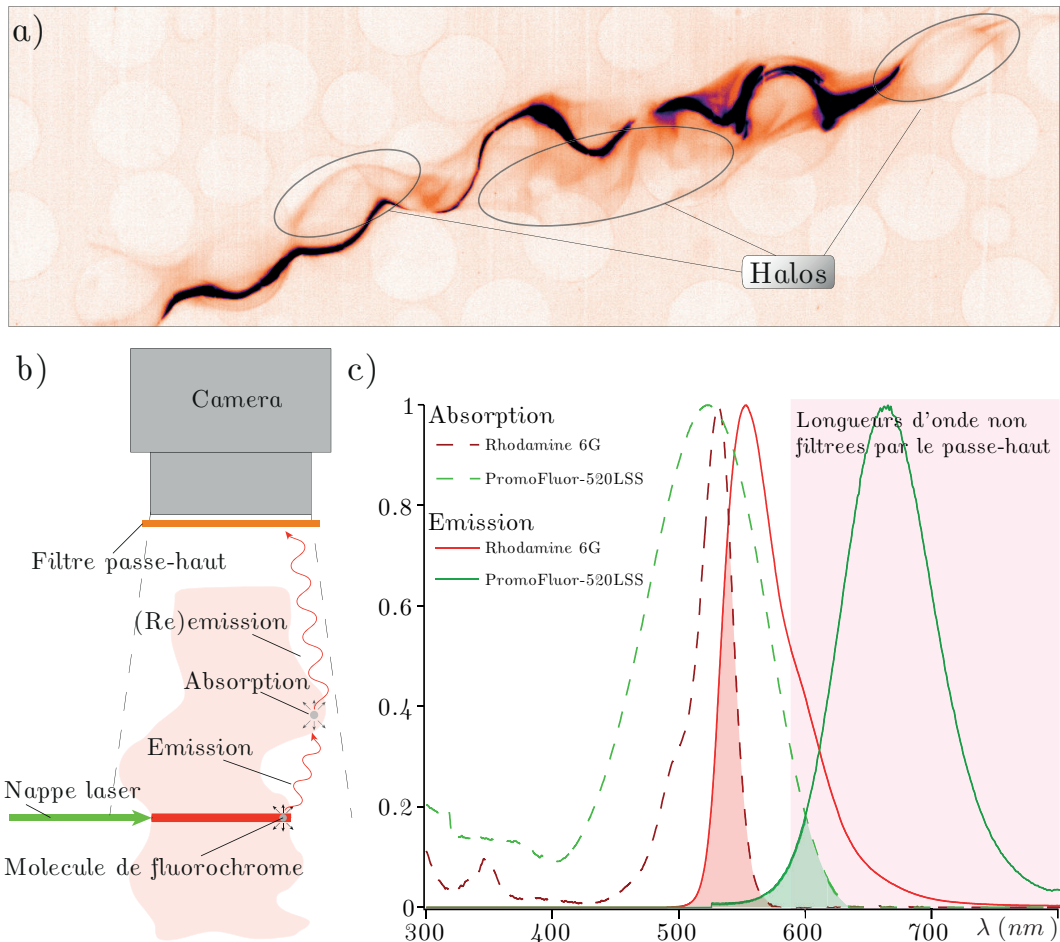


FIGURE 6.4 – a) Le ‘halo’ visible autour d’une goutte de colorant perturbe la mesure des distributions de concentration. b) La lumière ré-émise par fluorescence des molécules de fluorochrome contenues dans le plan de visualisation excite les molécules de fluorochrome localisées en dehors du plan de la nappe laser : un halo se forme autour de la goutte. b) Spectres d’émission et d’absorption de la rhodamine 6G et du PromoFluor-520LSS.

les directions. Etant donné la forme des spectres d’absorption et d’émission de la rhodamine 6G, une partie de ces photons sont émis à une longueur d’onde telle qu’ils peuvent à leur tour exciter des molécules de fluorochrome localisées en dehors du plan de visualisation, cf. Figure 6.4 (b). Le rendement quantique, *i.e.* la proportion de photons ré-émis par fluorescence, de la rhodamine 6G étant élevé (0.95), la quantité de photons excitant les molécules en dehors du plan de visualisation, et ré-émise par celles-ci, n’est pas négligeable et peut engendrer l’apparition d’un ‘halo’ autour des contours nets du filament de rhodamine contenu dans le plan de la nappe laser. Pour atténuer cet effet, nous envisageons d’utiliser un autre colorant fluorochrome, le PromoFluor-520LSS, qui possède des spectres d’émission et d’absorption dissociés, et dont le rendement quantique est plus faible (0.42). Son pic d’absorption à 520 nm permet d’utiliser la même diode laser. L’emploi de ce nouveau fluorochrome devrait permettre d’atténuer de façon significative l’intensité des halos et donc permettre une mesure beaucoup plus précise de l’évolution des distributions de concentration.



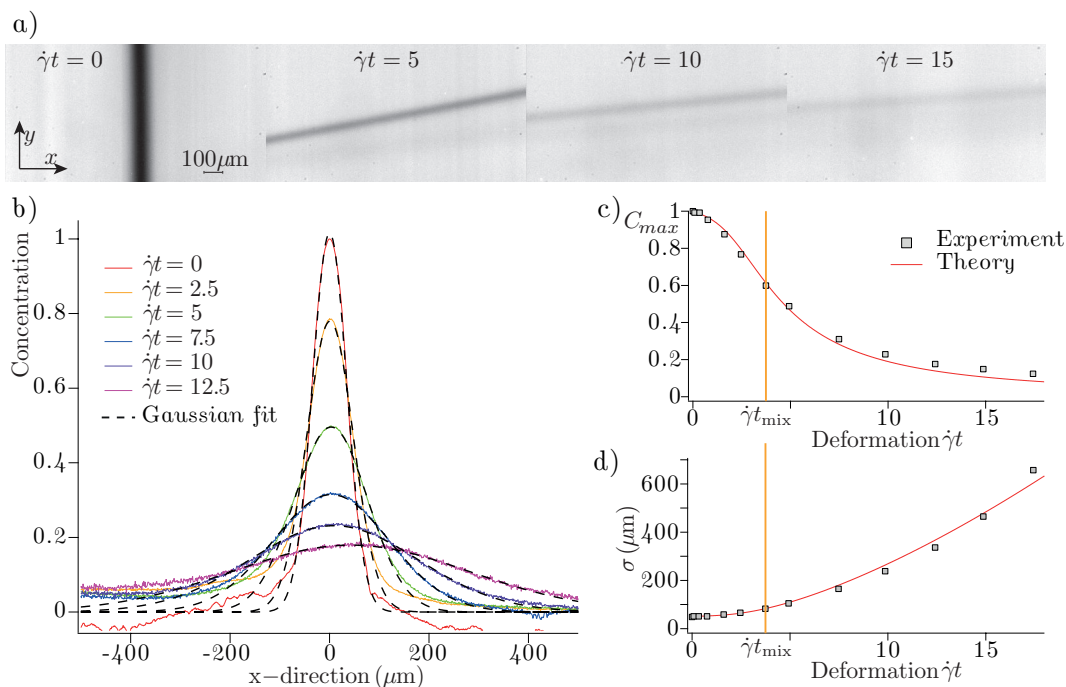


FIGURE 6.5 – a) Evolution d’une ligne bleachée dans un fluide pur soumis à un cisaillement simple. b) Profils de concentration moyen dans la direction  $x$ . Evolution de : c) la concentration maximale, d) l’écart-type en fonction de la déformation imposée. La ligne verticale orange représente le temps de Batchelor.

### 6.2.2 Validation du montage sur un cas simple

Avant de réaliser des expériences en présence de particules, nous avons choisi de valider l’ensemble du dispositif pour le cas simple du couplage advection-diffusion, de type Taylor-Aris, dans un cisaillement linéaire [71,81]. Pour cela, nous avons réalisé l’expérience présentée sur la Figure 6.5 (a) ainsi que dans le film Chapitre6-Movie1, en étudiant l’évolution d’une ligne photo-bleachée soumise à un écoulement de cisaillement simple (sans particules). La ligne présente initialement un profil de concentration gaussien d’écart-type  $\sigma_0 = 50 \mu\text{m}$ . Sous l’effet de l’advection, la ligne est compressée dans sa direction transverse et les gradients de concentration augmentent. L’augmentation des gradients de concentration intensifie l’effet de la diffusion moléculaire, ce qui résulte en une chute des niveaux de concentration et un étalement du profil selon l’axe  $x$ , cf. Figure 6.5 (b).

Comme cela a été présenté au début du Chapitre 5, ce cas peut être traité analytiquement en employant l’approche lamellaire. Le temps adimensionné est

$$\tau = \frac{D_0}{s_0^2} \left( t + \frac{\dot{\gamma}^2 t^3}{3} \right), \quad (6.1)$$

et pour une distribution de concentration initiale gaussienne, l’évolution des profils de concentration selon l’axe  $x$  est donné par

$$C(x, t) = \frac{C_0}{\sqrt{1 + 4\tau}} e^{-\frac{x^2}{\sigma_0^2(1+4\tau)}}. \quad (6.2)$$

La concentration maximale décroît selon

$$C_{\max} = \frac{C_0}{\sqrt{1 + 4\tau}}, \quad (6.3)$$

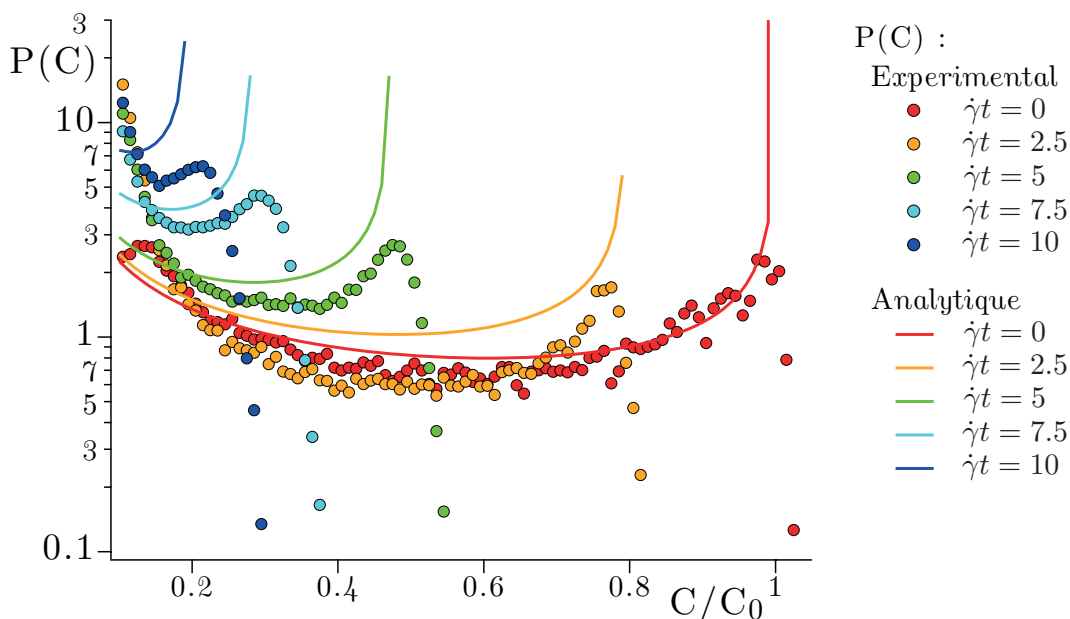


FIGURE 6.6 – Evolution de la distribution de concentration pour une ligne bleachée soumise à un cisaillement simple : mesures expérimentales et prédictions théoriques.

et la largeur de profil augmente telle que

$$\sigma = \sigma_0 \sqrt{1 + 4\tau}. \quad (6.4)$$

On peut observer sur la Figure 6.5 (c et d) que les mesures expérimentales réalisées sont en très bon accord avec les prédictions théoriques. Le temps de Batchelor, estimé en équilibrant le taux de compression  $\dot{s}/s$  au taux d'élargissement diffusif  $D_0/s^2$ , est  $t_{\text{mix}} = \text{Pe}^{1/3}/\dot{\gamma} \approx 3.7/\dot{\gamma}$ . Ce temps est représenté par les lignes verticales orange sur la Figure 6.5 (c et d).

Les distributions expérimentales de concentration mesurées à partir de ces images sont également en accord quantitatif avec les prédictions théoriques, comme illustré Figure 6.6. Ces premiers résultats encourageant illustrent que la résolution spatiale de ces expériences est suffisante pour résoudre l'échelle de Batchelor et capturer toute la dynamique du processus d'homogénéisation. L'utilisation d'un shutter nous a bien permis de nous affranchir du photo-bleaching. Par contre, cette configuration d'écoulement 2D (sans particules) ne produisant pas de halos, nous n'avons pas utilisé le nouveau fluorochrome.

Comme illustré Figure 6.7 ainsi que dans le film Chapitre6-Movie2, cette technique de bleaching pour réaliser le blob initial permet aussi de réaliser initialement deux lignes parallèles. Ce contrôle des conditions initiales est particulièrement intéressant car il permettra d'étudier finement le phénomène de coalescence : 'quantum d'action' dans la construction des distributions de concentration qui prend en compte l'agrégation des filaments voisins. En raison du temps imparti, le travail d'analyse de cette seconde expérience de validation du dispositif expérimental reste à finaliser.

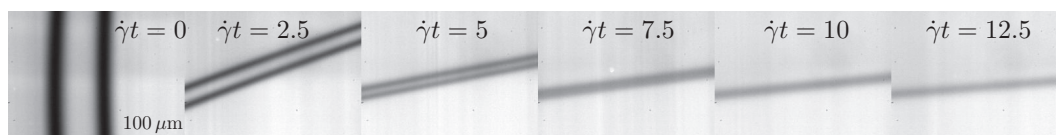


FIGURE 6.7 – Coalescence de 2 lignes bleachées soumises à un cisaillement simple dans un fluide pur.

\*  
\* \*

Le nouveau dispositif expérimental présenté ci-dessus devrait permettre de mesurer finement l'évolution des distributions de concentration dans les suspensions de particules cisillées. Ces résultats expérimentaux pourront être comparés aux prédictions analytiques obtenues à partir de la connaissance des lois d'étirement, et à celles obtenues numériquement à partir de la *Diffusive Strip Method*. La complémentarité de ces trois approches — théorique, numérique, et expérimentale — devrait offrir dans un avenir proche, une description complète du processus de mélange d'un scalaire au sein des suspensions de particules cisillées à bas nombre de Reynolds.



---

## Bibliographie

---

- [1] J. Baldyga and J. R. Bourne, *Turbulent mixing and chemical reactions*. Wiley, 1999.
- [2] J. M. Ottino, *The kinematics of mixing : stretching, chaos, and transport*, vol. 3. Cambridge university press, 1989.
- [3] T. Le Borgne, M. Dentz, and E. Villermaux, “The lamellar description of mixing in porous media,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 770, pp. 458–498, 2015.
- [4] V. Kapoor and P. K. Kitanidis, “Concentration fluctuations and dilution in aquifers,” *Water resources research*, vol. 34, no. 5, pp. 1181–1193, 1998.
- [5] S. Kim and S. J. Karrila, *Microhydrodynamics : principles and selected applications*. Courier Corporation, 2013.
- [6] P. Arp and S. Mason, “The kinetics of flowing dispersions : Ix. doublets of rigid spheres (experimental),” *Journal of colloid and interface science*, vol. 61, no. 1, pp. 44–61, 1976.
- [7] F. Da Cunha and E. Hinch, “Shear-induced dispersion in a dilute suspension of rough spheres,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 309, pp. 211–223, 1996.
- [8] T. Lucretius Carus, *De rerum natura*. Circa 60 BC. English translation : *On the Nature of Things* by A. M. Esolen, The Johns Hopkins Univ. Pr. (1995).
- [9] B. Duplantier, “Le mouvement brownien, “divers et ondoyant”, séminaire poincaré.”
- [10] R. Brown, “A brief account of microscopical observations made in the months of june, july, and august, 1827 on the particles contained in the pollen of plants, and on the general existence of active molecules in organic and inorganic bodies,” *The miscellaneous botanical works of Robert Brown*, vol. 1, 1828.
- [11] A. Einstein, “uber die von der molekularkinetischen theorie der wurme geforderte bewegung von in ruhenden flussigkeiten suspendierten teilchen,” *Annalen der Physik*, vol. 322, no. 8, pp. 549–560, 1905. English translation in *Investigations on the Theory of the Brownian Movement* (Dover Publication, Inc.).
- [12] M. von Smoluchowski, “Zur kinetischen theorie der brownschen molekularebewegung und der suspensionen,” *Annalen der Physik*, vol. 326, no. 14, pp. 756–780, 1906.
- [13] W. Sutherland, “Lxxv. a dynamical theory of diffusion for non-electrolytes and the molecular mass of albumin,” *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, vol. 9, no. 54, pp. 781–785, 1905.
- [14] P. Langevin, “Sur la théorie du mouvement brownien,” *C. R. Acad. Sci. (Paris)*, vol. 146, pp. 530–533, 1908. English translation in *American Journal of Physics*, vol. 6, pp. 1079–1081 (1997).

- [15] J. Perrin, *Les atomes*. Librairie Félix Alcan, 1913.
- [16] E. Hinch, "Mixing : turbulence and chaos — an introduction," in *Mixing*, pp. 37–56, Springer, 1999.
- [17] I. E. Zarraga and D. T. Leighton Jr, "Measurement of an unexpectedly large shear-induced self-diffusivity in a dilute suspension of spheres," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 14, no. 7, pp. 2194–2201, 2002.
- [18] D. Leighton and A. Acrivos, "Measurement of shear-induced self-diffusion in concentrated suspensions of spheres," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 177, pp. 109–131, 1987.
- [19] B. Metzger, O. Rahli, and X. Yin, "Heat transfer across sheared suspensions : role of the shear-induced diffusion," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 724, pp. 527–552, 2013.
- [20] E. C. Eckstein, D. G. Bailey, and A. H. Shapiro, "Self-diffusion of particles in shear flow of a suspension," *J. Fluid Mech*, vol. 79, no. 1, p. 191, 1977.
- [21] B. Ho and L. Leal, "Inertial migration of rigid spheres in two-dimensional unidirectional flows," *Journal of fluid mechanics*, vol. 65, no. 02, pp. 365–400, 1974.
- [22] D. J. Jeffrey and A. Acrivos, "The rheological properties of suspensions of rigid particles," *AIChE Journal*, vol. 22, no. 3, pp. 417–432, 1976.
- [23] P. R. Nott and J. F. Brady, "Pressure-driven flow of suspensions : simulation and theory," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 275, pp. 157–199, 1994.
- [24] J. J. Stickel and R. L. Powell, "Fluid mechanics and rheology of dense suspensions," *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 37, pp. 129–149, 2005.
- [25] B. Snook, J. E. Butler, and É. Guazzelli, "Dynamics of shear-induced migration of spherical particles in oscillatory pipe flow," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 786, pp. 128–153, 2015.
- [26] D. Leighton and A. Acrivos, "The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 181, pp. 415–439, 1987.
- [27] Y. Wang, R. Mauri, and A. Acrivos, "The transverse shear-induced liquid and particle tracer diffusivities of a dilute suspension of spheres undergoing a simple shear flow," *Journal of fluid mechanics*, vol. 327, pp. 255–272, 1996.
- [28] S. Biemfohr, T. Looby, S. Biemfohr, and D. Leighton, "Measurement of the shear-induced coefficient of self-diffusion in dilute suspensions," in *Flow of Particulates and Fluids : Proceedings, Joint DOE/NSF Workshop on Flow of Particulates and Fluids, Ithaca, New York*, vol. 29, pp. 207–232, 1993.
- [29] S. E. Phan and D. T. Leighton Jr, "Measurement of the shear-induced tracer diffusivity in a concentrated suspension," *J. Fluid Mech*, *submitted*, 1993.
- [30] I. E. Zarraga and D. T. Leighton Jr, "Normal stress and diffusion in a dilute suspension of hard spheres undergoing simple shear," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 13, no. 3, pp. 565–577, 2001.
- [31] V. Breedveld, D. Van den Ende, M. Bosscher, and J. Jongschaap, RJJ & Mellema, "Measurement of the full shear-induced self-diffusion tensor of noncolloidal suspensions," *The Journal of chemical physics*, vol. 116, p. 10529, 2002.
- [32] V. Breedveld, D. van den Ende, A. Tripathi, and A. Acrivos, "The measurement of the shear-induced particle and fluid tracer diffusivities in concentrated suspensions by a novel method," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 375, no. 1, pp. 297–318, 1998.
- [33] V. Breedveld, D. van den Ende, R. Jongschaap, and J. Mellema, "Shear-induced diffusion and rheology of noncolloidal suspensions : Time scales and particle displacements," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 114, p. 5923, 2001.

- 
- [34] V. Breedveld, D. van den Ende, M. Bosscher, R. J. Jongschaap, and J. Mellema, "Measuring shear-induced self-diffusion in a counterrotating geometry," *Physical Review E*, vol. 63, no. 2, p. 021403, 2001.
- [35] J. F. Brady and G. Bossis, "Stokesian dynamics," *Annual review of fluid mechanics*, vol. 20, pp. 111–157, 1988.
- [36] A. Sierou and J. F. Brady, "Accelerated stokesian dynamics simulations," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 448, pp. 115–146, 2001.
- [37] M. Marchioro and A. Acrivos, "Shear-induced particle diffusivities from numerical simulations," *Journal of fluid mechanics*, vol. 443, pp. 101–128, 2001.
- [38] A. Sierou and J. F. Brady, "Shear-induced self-diffusion in non-colloidal suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 506, pp. 285–314, 2004.
- [39] J. P. Gollub and D. Pine, "Microscopic irreversibility and chaos," 2006.
- [40] D. Pine, J. Gollub, J. Brady, and A. Leshansky, "Chaos and threshold for irreversibility in sheared suspensions," *Nature*, vol. 438, no. 7070, pp. 997–1000, 2005.
- [41] L. Corte, P. Chaikin, J. Gollub, and D. Pine, "Random organization in periodically driven systems," *Nature Physics*, vol. 4, no. 5, pp. 420–424, 2008.
- [42] G. Drazer, J. Koplik, B. Khusid, and A. Acrivos, "Deterministic and stochastic behaviour of non-brownian spheres in sheared suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 460, pp. 307–335, 2002.
- [43] I. M. Jánosi, T. Tél, D. E. Wolf, and J. A. Gallas, "Chaotic particle dynamics in viscous flows : The three-particle stokeslet problem," *Physical Review E*, vol. 56, no. 3, p. 2858, 1997.
- [44] J. F. Morris, "A review of microstructure in concentrated suspensions and its implications for rheology and bulk flow," *Rheologica acta*, vol. 48, no. 8, pp. 909–923, 2009.
- [45] F. Blanc, F. Peters, E. Lemaire, *et al.*, "Experimental signature of the pair-trajectories of rough spheres in the shear-induced microstructure in non-colloidal suspensions," *Physical review letters*, vol. 107, 2011.
- [46] B. Metzger and J. E. Butler, "Irreversibility and chaos : Role of long-range hydrodynamic interactions in sheared suspensions," *Physical Review E*, vol. 82, no. 5, p. 051406, 2010.
- [47] B. Metzger, P. Pham, and J. E. Butler, "Irreversibility and chaos : Role of lubrication interactions in sheared suspensions," *Physical Review E*, vol. 87, no. 5, p. 052304, 2013.
- [48] P. Pham, B. Metzger, and J. E. Butler, "Particle dispersion in sheared suspensions : Crucial role of solid-solid contacts," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 27, no. 5, p. 051701, 2015.
- [49] P. Pham, B. Metzger, and J. E. Butler, "Origin of critical strain amplitude in periodically sheared suspensions," *Phys. Rev. Fluids, in Press.*, 2016.
- [50] F. Blanc, E. Lemaire, A. Meunier, and F. Peters, "Microstructure in sheared non-brownian concentrated suspensions," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 57, no. 1, pp. 273–292, 2013.
- [51] C. Sohn and M. Chen, "Microconvective thermal conductivity in disperse two-phase mixtures as observed in a low velocity couette flow experiment," *Journal of Heat Transfer*, vol. 103, no. 1, pp. 47–51, 1981.
- [52] S. Shin and S.-H. Lee, "Thermal conductivity of suspensions in shear flow fields," *International journal of heat and mass transfer*, vol. 43, no. 23, pp. 4275–4284, 2000.
- [53] N.-H. L. Wang and K. Keller, "Augmented transport of extracellular solutes in concentrated erythrocyte suspensions in couette flow," *Journal of colloid and interface science*, vol. 103, no. 1, pp. 210–225, 1985.

- [54] L. Wang, D. L. Koch, X. Yin, and C. Cohen, "Hydrodynamic diffusion and mass transfer across a sheared suspension of neutrally buoyant spheres," *Physics of Fluids*, vol. 21, no. 3, pp. 033303–033303, 2009.
- [55] M. Workamp, V. Saggiomo, and J. A. Dijksman, "A simple low pressure drop suspension-based microfluidic mixer," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 25, no. 9, p. 094003, 2015.
- [56] J. A. Dijksman, F. Rietz, K. A. Lorincz, M. van Hecke, and W. Losert, "Invited article : Refractive index matched scanning of dense granular materials," *Review of Scientific Instruments*, vol. 83, no. 1, pp. 011301–011301, 2012.
- [57] S. Wiederseiner, N. Andreini, G. Epely-Chauvin, and C. Ancey, "Refractive-index and density matching in concentrated particle suspensions : a review," *Experiments in fluids*, vol. 50, no. 5, pp. 1183–1206, 2011.
- [58] G. P. Krishnan, S. Beimfohr, and D. T. Leighton, "Shear-induced radial segregation in bidisperse suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 321, pp. 371–393, 1996.
- [59] T. K. Meyvis, S. C. De Smedt, P. Van Oostveldt, and J. Demeester, "Fluorescence recovery after photobleaching : a versatile tool for mobility and interaction measurements in pharmaceutical research," *Pharmaceutical research*, vol. 16, no. 8, pp. 1153–1162, 1999.
- [60] C. T. Culbertson, S. C. Jacobson, and J. Michael Ramsey, "Diffusion coefficient measurements in microfluidic devices," *Talanta*, vol. 56, no. 2, pp. 365–373, 2002.
- [61] P. Meunier and T. Leweke, "Analysis and treatment of errors due to high velocity gradients in particle image velocimetry," *Experiments in fluids*, vol. 35, no. 5, pp. 408–421, 2003.
- [62] B. Metzger and J. E. Butler, "Clouds of particles in a periodic shear flow," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 24, no. 2, p. 021703, 2012.
- [63] P. Meunier and E. Villermaux, "The diffusive strip method for scalar mixing in two dimensions," *Journal of fluid mechanics*, vol. 662, pp. 134–172, 2010.
- [64] G. I. Taylor and J. Friedman, "Low reynolds number flows." , Nat. Com. on Fluid Mech. Films, (Encyc. Brit. Educ. Corp.), United States, 1966.
- [65] M. Souzy, X. Yin, E. Villermaux, C. Abid, and B. Metzger, "Super-diffusion in sheared suspensions," *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 27, no. 4, p. 041705, 2015.
- [66] T. Peng, "Detect circles with various radii in grayscale image via hough transform." ,[http ://www.mathworks.com/matlabcentral/ fileexchange/9168-detect-circles-with-various-radii-in-greyscale-image-via-hough-transform](http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/9168-detect-circles-with-various-radii-in-greyscale-image-via-hough-transform), (updated 17 November 2010).
- [67] S. Gallier, E. Lemaire, L. Lobry, and F. Peters, "Effect of confinement in wall-bounded non-colloidal suspensions," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 799, pp. 100–127, 2016.
- [68] K. Yeo and M. R. Maxey, "Dynamics of concentrated suspensions of non-colloidal particles in couette flow," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 649, pp. 205–231, 2010.
- [69] E. Villermaux, "Mixing by porous media," *Comptes Rendus Mécanique*, vol. 340, no. 11, pp. 933–943, 2012.
- [70] G. Taylor, "Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube," in *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 219, pp. 186–203, The Royal Society, 1953.
- [71] R. Aris, "On the dispersion of a solute in pulsating flow through a tube," in *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 259, pp. 370–376, The Royal Society, 1960.
- [72] C. Price, X. Zhou, W. Li, and L. Wang, "Real-time measurement of solute transport within the lacunar-canalicular system of mechanically loaded bone : direct evidence for load-induced fluid flow," *Journal of Bone and Mineral Research*, vol. 26, no. 2, pp. 277–285, 2011.



- [73] S. M. Schmidt, M. J. McCready, and A. E. Ostafin, "Effect of oscillating fluid shear on solute transport in cortical bone," *Journal of biomechanics*, vol. 38, no. 12, pp. 2337–2343, 2005.
- [74] A. Daitche and T. Tél, "Dynamics of blinking vortices," *Physical Review E*, vol. 79, no. 1, p. 016210, 2009.
- [75] A. D. Stroock, S. K. Dertinger, A. Ajdari, I. Mezić, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, "Chaotic mixer for microchannels," *Science*, vol. 295, no. 5555, pp. 647–651, 2002.
- [76] E. Villiermaux, A. Stroock, and H. Stone, "Bridging kinematics and concentration content in a chaotic micromixer," *Physical Review E*, vol. 77, no. 1, p. 015301, 2008.
- [77] M. Souzy, "Movie 1) dispersion of a rhodamine layer in a sheared suspension of particles, movie 2) piv in the flowing suspension, and movie 3) rolling-coating mechanism." <http://dx.doi.org/10.1063/1.4918613>, (updated 15 April 2015).
- [78] E. Villiermaux, *Advances in Applied Mechanics, On dissipation in stirred mixtures*, vol. 45. Elsevier, 2012.
- [79] F. Chillá, S. Ciliberto, C. Innocenti, and E. Pampaloni, "Boundary layer and scaling properties in turbulent thermal convection," *Il Nuovo Cimento D*, vol. 15, no. 9, pp. 1229–1249, 1993.
- [80] D. L. Koch, "Hydrodynamic diffusion near solid boundaries with applications to heat and mass transport into sheared suspensions and fixed-fibre beds," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 318, pp. 31–47, 1996.
- [81] W. E. Ranz, "Applications of a stretch model to mixing, diffusion, and reaction in laminar and turbulent flows," *AIChE Journal*, vol. 25, no. 1, pp. 41–47, 1979.
- [82] G. Batchelor, "Small-scale variation of convected quantities like temperature in turbulent fluid part 1. general discussion and the case of small conductivity," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 5, no. 01, pp. 113–133, 1959.
- [83] E. Villiermaux and J. Duplat, "Mixing as an aggregation process," *Physical review letters*, vol. 91, no. 18, p. 184501, 2003.
- [84] F. E. Marble, "Mixing, diffusion and chemical reaction of liquids in a vortex field," in *Chemical Reactivity in Liquids*, pp. 581–596, Springer, 1988.
- [85] E. Villiermaux and H. Rehab, "Mixing in coaxial jets," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 425, pp. 161–185, 2000.
- [86] P. Meunier and E. Villiermaux, "How vortices mix," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 476, pp. 213–222, 2003.
- [87] P. E. Dimotakis and H. J. Catrakis, "Turbulence, fractals, and mixing," in *Mixing*, pp. 59–143, Springer, 1999.
- [88] J. Duplat and E. Villiermaux, "Mixing by random stirring in confined mixtures," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 617, pp. 51–86, 2008.
- [89] G. Batchelor, "The effect of homogeneous turbulence on material lines and surfaces," in *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 213, pp. 349–366, The Royal Society, 1952.
- [90] A. Fiori and G. Dagan, "Concentration fluctuations in transport by groundwater : Comparison between theory and field experiments," *Water resources research*, vol. 35, no. 1, pp. 105–112, 1999.
- [91] T. Le Borgne, M. Dentz, and J. Carrera, "Lagrangian statistical model for transport in highly heterogeneous velocity fields," *Physical review letters*, vol. 101, no. 9, p. 090601, 2008.
- [92] X. Chateau, G. Ovarlez, and K. L. Trung, "Homogenization approach to the behavior of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids," *Journal of Rheology (1978-present)*, vol. 52, no. 2, pp. 489–506, 2008.

- [93] E. Lerner, G. Düring, and M. Wyart, “A unified framework for non-brownian suspension flows and soft amorphous solids,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 109, no. 13, pp. 4798–4803, 2012.
- [94] S. Dagois-Bohy, S. Hormozi, É. Guazzelli, and O. Pouliquen, “Rheology of dense suspensions of non-colloidal spheres in yield-stress fluids,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 776, p. R2, 2015.
- [95] J. Duplat, C. Innocenti, and E. Villermaux, “A nonsequential turbulent mixing process,” *Physics of Fluids (1994-present)*, vol. 22, no. 3, p. 035104, 2010.
- [96] J. Dasan, T. Ramamohan, A. Singh, and P. R. Nott, “Stress fluctuations in sheared stokesian suspensions,” *Physical Review E*, vol. 66, no. 2, p. 021409, 2002.
- [97] E. S. G. Shaqfeh and D. L. Koch, “Polymer stretch in dilute fixed beds of fibres or spheres,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 244, pp. 17–54, 1992.
- [98] O. Harlen and D. L. Koch, “Simple shear flow of a suspension of fibres in a dilute polymer solution at high Deborah number,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 252, pp. 187–187, 1993.
- [99] B. Metzger, M. Nicolas, and É. Guazzelli, “Falling clouds of particles in viscous fluids,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 580, no. 1, pp. 283–301, 2007.
- [100] K. A. Buch and W. J. Dahm, “Experimental study of the fine-scale structure of conserved scalar mixing in turbulent shear flows. part 2. sc [approximate] 1,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 364, pp. 1–29, 1998.
- [101] M. Trulsson, E. DeGiuli, and M. Wyart, “Effect of friction on dense suspension flows of hard particles,” *arXiv preprint arXiv :1606.07650*, 2016.
- [102] F. Boyer, É. Guazzelli, and O. Pouliquen, “Unifying suspension and granular rheology,” *Physical Review Letters*, vol. 107, no. 18, p. 188301, 2011.
- [103] M. M. Afonso and D. Vincenzi, “Nonlinear elastic polymers in random flow,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 540, pp. 99–108, 2005.
- [104] W. Cocks, “Turbulent hydrodynamic line-stretching : The random walk limit,” *Physics of Fluids (1958-1988)*, vol. 14, no. 8, pp. 1624–1628, 1971.
- [105] W. Cocks, “Turbulent hydrodynamic line stretching : consequences of isotropy,” *Physics of Fluids (1958-1988)*, vol. 12, no. 12, pp. 2488–2492, 1969.
- [106] S. A. Orszag, “Comments on turbulent hydrodynamic line stretching : consequences of isotropy,” *Physics of Fluids (1958-1988)*, vol. 13, no. 8, pp. 2203–2204, 1970.
- [107] S. Girimaji and S. Pope, “Material-element deformation in isotropic turbulence,” *Journal of fluid mechanics*, vol. 220, pp. 427–458, 1990.
- [108] J. Duplat and E. Villermaux, “Persistency of material element deformation in isotropic flows and growth rate of lines and surfaces,” *The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems*, vol. 18, no. 2, pp. 353–361, 2000.
- [109] T. Le Borgne, M. Dentz, and E. Villermaux, “Stretching, coalescence, and mixing in porous media,” *Physical review letters*, vol. 110, no. 20, p. 204501, 2013.
- [110] E. Villermaux and J. Duplat, “Coarse grained scale of turbulent mixtures,” *Physical review letters*, vol. 97, no. 14, p. 144506, 2006.
- [111] B. Bailey and M. Yoda, “An aqueous low-viscosity density-and refractive index-matched suspension system,” *Experiments in fluids*, vol. 35, no. 1, pp. 1–3, 2003.







## Résumé :

L'objectif de cette thèse principalement expérimentale est de comprendre, à l'échelle de la taille des particules, les mécanismes à l'origine de l'**intensification des transferts** ayant lieu dans **les suspensions de particules non-inertielles et non-Browniennes** soumises à un cisaillement. *i)* En s'inspirant de l'expérience de Taylor, j'ai d'abord étudié l'évolution d'une goutte de colorant soumise à un cisaillement périodique. On observe qu'au-delà d'une amplitude de déformation critique, **la présence des particules brise la réversibilité** du système. La goutte de colorant est alors rapidement dispersée dans le milieu environnant. Cette évolution est bien décrite par un coefficient de diffusion effectif qui est du même ordre que celui caractérisant l'agitation des particules. *ii)* Nous avons mis en évidence un mécanisme de '**rolling-coating**' qui permet de comprendre le **processus de transfert en proche paroi**. Dans cette zone, la rotation des particules induit un transport à flux constant du scalaire de la paroi vers le bulk de la suspension, court-circuitant ainsi la couche limite diffusive. L'évolution des profils de concentration peut être décrite avec une condition limite de flux constant (conséquence du 'rolling-coating') et un profil de diffusion effectif, déterminé par la mesure des fluctuations de vitesse du fluide interstitiel, qui croît linéairement avec la distance à la paroi. La solution analytique proposée, basée sur une fonction gamma incomplète, prédit quantitativement l'évolution de ces profils. *iii)* Finalement, des mesures PIV haute résolution du fluide interstitiel dans le bulk de la suspension ont été réalisées. A partir de ces champs de vitesses, on a pu reconstruire l'historique d'étirement de lignes matérielles du fluide et ainsi déterminer **les lois d'étirement**, information fondamentale pour la compréhension du processus de mélange. Cette **caractérisation complète de la cinématique de déformation** dans les suspensions cisillées montre que la présence des particules change la nature des lois d'étirement qui passent de linéaires dans un fluide pur, à exponentielles en présence de particules. La qualité des champs de vitesses mesurés par PIV nous a par ailleurs permis d'extraire deux grandeurs très importantes : la distribution des taux de cisaillements locaux ainsi que leur temps de persistance. A partir de ces deux quantités, on peut décrire l'historique d'étirement des lignes matérielles comme un **processus multiplicatif** qui consiste en une succession de cycles d'étirements décorrés. Ce modèle simple prédit quantitativement l'évolution de la moyenne, de la variance, et la **forme log-normale des distributions d'étirements** mesurées expérimentalement. La forte inhomogénéité des étirements dans les suspensions cisillées implique une large distribution du temps de mélange.

## Abstract :

The goal of this dissertation is to understand, at the particle scale, the mechanisms at the origin of the **transfer enhancement** in sheared **non-Brownian and non-inertial particulate suspensions**. *i)* Inspired by Taylor's experiment, I first studied the evolution of a drop of dye in a periodic shear. One can observe that beyond a critical strain amplitude, **the presence of particles breaks the reversibility of the system**. The drop of dye is thus rapidly dispersed in the surrounding medium. This evolution is well described using an effective diffusion coefficient which is of the same order as the particle diffusion coefficient. *ii)* We observed a '**rolling-coating**' mechanism which allowed a better understanding of the **transfer process in the wall vicinity**. In this region, the rotation of the particles convectively transport a scalar at a constant rate directly from the wall towards the bulk of the suspension, breaking the diffusive boundary layer. The evolution of the concentration profiles can be described using a constant flux boundary condition (induced by the 'rolling-coating'), and an effective diffusion profile, based on the experimentally measured velocity fluctuations of the fluid phase, which scales linearly with the distance from the wall. The analytical solution for the concentration profile, based on an incomplete gamma function, is in good agreement with experimental measurements. *iii)* Lastly, high-resolution PIV measurements of the fluid phase were performed in the bulk of the suspension. Using these velocity fields, we reconstructed the stretching histories of fluid material lines to determine **the stretching laws**, crucial for the understanding of the mixing process. This **complete characterization of the kinematics of deformation** in sheared suspensions reveals that the presence of the particles changes the very nature of the stretching laws from linear, in a pure fluid, to exponential in the presence of particles. According to the quality of the measured velocity fields, two very important quantities were determined : the local shear rate distribution, and their persistency times. Based on these two quantities, one can describe the stretching history of material lines using a **multiplicative model** which consists of a sequence of uncorrelated stretching cycles. This simple model quantitatively predicts the experimentally measured evolution of the mean and the variance of the elongations of the fluid material lines as well as their evolution towards a **log-normal distribution**. The strong stretching inhomogeneity in sheared suspensions results in a broad distribution of the mixing time.