**SOCIÉTÉ HYDROTECHNIQUE DE FRANCE
SOCIÉTÉ FRANÇAISE DE FILTRATION**

Colloque d'hydrotechnique — 20 et 21 novembre 1985

Transfert de matière et hydrodynamique
dans les procédés de séparation par membranes

Écoulements non-newtoniens

Non-newtonian flows

D. Bellet R. Gaudu

Institut de mécanique des fluides
Toulouse

En liaison avec le sujet général du colloque, des notions générales de rhéologie sont tout d'abord présentées; elles mettent en évidence les relations qui peuvent exister entre contraintes, déformations et vitesses de déformations de la matière ainsi que l'histoire des sollicitations appliquées.

Les différents modèles classiques de comportements rhéologiques des fluides sont ensuite répertoriés avec les méthodes de mesures rhéométriques utilisées pour caractériser ces comportements. Il s'ensuit une classification des fluides utile à la prévision de leur contribution aux transferts dont ils sont le siège.

Une distinction est effectuée enfin entre les écoulements à grande échelle et les aspects microrhéologiques relatifs aux canaux fins intervenant dans les procédés de séparation, en microfiltration et dialyse.

In conjunction with the general subject of the conference, general notions concerning rheology are first of all put forward. They reveal the relationships which may exist amongst stresses, deformations and deformation speeds of the matter, as well as a chronological account of the stresses applied.

The various traditional models of rheological properties of fluids are then listed, together with the rheometrical measurement methods used for characterizing these properties. This results in a classification of fluids, a classification which enables their contribution to the transfers, of which they are the recipient, to be assessed.

Finally, a distinction is made between the large-scale flows and the microrheological aspects relating to fine channels occurring in the separation processes, in microfiltration and dialysis.

I. NOTIONS GÉNÉRALES DE RHEOLOGIE

A. Introduction-Définition

Les comportements mécaniques idéalisés, tels que le comportement "solide parfaitement élastique" introduit par HOOKE ou le comportement "liquide parfaitement visqueux" défini par NEWTON, reflètent parfois assez bien la réalité dans le cas de certains matériaux, soumis à certaines sollicitations, pour que l'on puisse les accepter sans grand risque d'erreur. Mais, en fait, tous les corps manifestent à des degrés divers toutes les formes de comportements; situer le comportement rhéologique d'un matériau au milieu de ce large spectre, revient à mettre en évidence son caractère dominant et les influences directes sur les déformations ou écoulements dont il sera le siège. On doit noter, à ce sujet, que ce n'est pas le matériau lui-même qui peut être caractérisé pour une appréciation rhéologique mais seulement son comportement lié à certaines sollicitations bien définies auxquelles il est soumis.

La Rhéologie ou "Science des écoulements ou déformations" de la matière a pour objectif l'étude de toutes ces formes variées de comportements mécaniques et vise à caractériser les réponses mécaniques d'un matériau donné au milieu de ce spectre. Les frontières de la Rhéologie sont conventionnelles en fonction des limites adoptées pour définir le spectre des comportements; mais, quelles que soient ces limites, cette discipline scientifique peut être considérée sous deux aspects:

• La Rhéologie expérimentale ou phénoménologique consiste à déterminer qualitativement puis quantitativement les déformations des corps réels sous l'action des sollicitations de natures diverses. Ces propriétés rhéologiques descriptives étant connues pour des conditions expérimentales particulières, il s'agit de les utiliser pour prévoir leurs réactions dans des conditions souvent très différentes, celles relatives à leur emploi réel.

• La Rhéologie théorique revient à développer les relations de simple proportionnalité entre tenseurs de contraintes Σ , de déformations infinitésimales ξ et de vitesses de déformations $\dot{\xi}$ établies en Mécanique classique des milieux continus, et à les remplacer par des lois linéaires plus complexes mais dont la valeur représentative est plus large. Mais la validité, concernant le domaine couvert, et la précision de telles lois linéaires est encore trop limitée, ce qui conduit à considérer des théories non linéaires; de la sorte il est possible de caractériser des milieux continus variés et d'expliquer l'origine, la nature et les effets de comportements non newtoniens de fluides qu'ils soient inélastiques, comme dans le cas de comportements ostwaldiens, ou viscoélastiques pour lesquels la variable temps et l'effet de mémoire jouent un rôle prépondérant.

L'idéal serait bien sûr de parvenir à construire des lois régissant le comportement des milieux à partir des lois microscopiques de la Physique du discontinu et en les intégrant suivant un processus stochastique approprié. Malheureusement, les satisfactions obtenues dans cette voie sont encore bien rares.

B. Modélisation Mathématique-Principes fondamentaux

L'expérience montre que chaque milieu continu obéit à des lois de comportement liant le tenseur de contraintes Σ aux tenseurs de déformations $\xi = \text{Sym grad } \vec{u}$ et de vitesses de déformations $\dot{\xi} = \text{Sym grad } \vec{v}$. La loi fondamentale de la dynamique implique que Σ soit symétrique ($\Sigma = \Sigma^T$), ce qui entraîne que les lois de comportement rhéologique fournissent six équations scalaires liant les six composantes strictes de Σ aux trois composantes V^i de la vitesse d'une particule dans l'espace à trois dimensions et à la masse volumique ρ du matériau.

Pour que ces lois soient utilisables, il est nécessaire de les schématiser et d'affecter aux résultats obtenus expérimentalement un modèle mathématique qui soit à la fois simple et qui rende bien compte du comportement rhéologique du milieu soumis à des sollicitations variées.

L'emploi du calcul tensoriel et du calcul symbolique permet de vaincre de nombreuses difficultés dans cette formulation et fournit une grande quantité d'informations en particulier pour les milieux isotropes. La forme des équations de comportement d'un matériau n'est pas entièrement arbitraire: en plus de l'homogénéité dimensionnelle, ces relations doivent satisfaire aux principes de la Thermodynamique, à des conditions nécessaires de stabilité des équilibres à certaines conditions d'invariance par changement de repère.

- les conditions nécessaires de stabilité des équilibres sont propres à chaque problème particulier; un problème physiquement raisonnable doit avoir une solution physiquement raisonnable. Ainsi, l'ensemble des équations de la dynamique, de continuité et le modèle rhéologique doivent assurer l'unicité et la stabilité des solutions.

- Principes fondamentaux:

Invariance tensorielle: les équations de comportement doivent pouvoir être écrites sous forme indépendante de l'orientation des axes du repère de référence ce qui implique que les grandeurs intervenant dans ces relations soient tensorielles. Entre autres, ce principe indique que la réponse possible d'un corps due à une cause donnée ne dépend que de la dimension de l'espace considéré (TRUEDEL).

Respect des symétries de la matière: dans un changement de repère respectant les symétries de la matière, les tenseurs matériels ne doivent pas changer et les équations de comportement doivent rester satisfaites en faisant subir aux tenseurs propriétés physiques seuls le changement de coordonnées. Le maximum de symétrie se présente lorsque la matière est isotrope et alors les composantes des tenseurs matériels ne doivent pas être modifiées quelle que soit la rotation du repère effectuée. Ils sont dits tenseurs isotropes.

Principe d'objectivité ou d'indifférence matérielle: les équations de comportement doivent être indépendantes du mouvement de l'observateur. De ce fait, pour être en accord avec ce principe les équations rhéologiques doivent

souvent être formulées par rapport à un repère dit "convectif" qui se déplace et se déforme avec le milieu auquel elles se rapportent.

C. Classification rhéologique des corps

Il est possible de classer les milieux continus à partir de leurs propriétés élastiques visqueuses voire plastiques, de leur comportement linéaire ou non ou encore de leur caractère solide, liquide ou pâteux. Ainsi, on peut distinguer :

- les solides élastiques pour lesquels existe une relation univoque en chaque point entre Σ et ξ ; si elle est linéaire il s'agit de solide de HOOKE ;

- les liquides visqueux : le temps joue ici un grand rôle et une relation univoque lie en chaque point Σ et ξ . Si la relation est linéaire, le comportement est dit NEWTONNIEN et NON-NEWTONNIEN dans le cas contraire ;

- les corps viscoélastiques manifestent en proportions équivalentes des effets élastiques et visqueux à chaque instant et en tout point du milieu. Cela se traduit par une relation liant Σ à ξ et $\dot{\xi}$; l'effet élastique ou visqueux pouvant être prépondérant, il y a une manifestation de phénomènes caractéristiques tels que la relaxation des contraintes ou le fluage des déformations.

- les plastiques peuvent accuser une déformation permanente en certains points propre aux corps visqueux à partir d'un seuil de contrainte au dessous duquel ils manifestent une réversibilité élastique des déformations.

Cette énumération doit être complétée en remarquant qu'il est souvent utile de conjuguer un certain nombre de ces comportements de base pour accéder à une représentation plus fine des propriétés rhéologiques de tel ou tel corps.

D. Le comportement non newtonien

La viscosité d'un fluide est qualitativement définie comme étant la résistance à l'écoulement de ce fluide . Pour provoquer un tel écoulement, une force doit être exercée sur le fluide de façon à ce que les forces visqueuses d'attraction mutuelle entre molécules soient surpassées et que ces molécules puissent se déplacer les unes par rapport aux autres. Naturellement, pour des forces appliquées données plus grandes sont les forces intermoléculaires et plus grande est la viscosité du fluide. L'aspect quantitatif a pour fondement la loi de NEWTON : "Les gradients de vitesse dans un fluide en mouvement sont proportionnels aux contraintes de cisaillement dont il est le siège".

Ce coefficient de proportionnalité est la fluidité du fluide, mais on a l'habitude de prendre en compte son inverse nommé viscosité dynamique η . La loi de NEWTON s'écrit donc :

$$\tau = \eta \frac{du}{dy}$$

Les fluides suivant cette loi ont un comportement visqueux "parfait" et sont dits "newtonniens". Ils sont caractérisés par une loi linéaire de déformation en fonction de l'effort appliqué, et leur viscosité, définie sans ambiguïté, est indépendante du taux de cisaillement durant lequel ils y sont soumis mais dépend gé-

néralement de la température.

La viscosité, ainsi considérée, constitue une notion simple et n'est malheureusement pas significative du comportement rhéologique de nombreux fluides, qui ne suivant pas la loi de NEWTON sont dits "non newtonniens". En effet, un grand nombre de fluides ont une structure moléculaire complexe et manifestent de ce fait des propriétés d'écoulement originales. Il n'est plus possible de définir pour eux de viscosité au sens classique, car cette propriété évolue avec les conditions de sollicitations; elle est alors une fonction du tenseur des contraintes voire même du temps d'application c'est-à-dire de l'histoire de l'écoulement.

II. MODELES RHEOLOGIQUES SIMPLES ET CLASSIFICATION DES FLUIDES

A. Caractéristiques rhéologiques usuelles

1. Viscosité en cisaillement

La contrainte de cisaillement τ_{xy} est liée au taux de cisaillement :

$$\dot{\gamma}_{xy} = \frac{dV_x}{dy}$$

$$\tau_{xy} = -\eta \dot{\gamma}_{xy}$$

Le coefficient viscosimétrique η ($\dot{\gamma}$) caractérisera le comportement en écoulement de cisaillement permanent.

2. Différences de contraintes normales

Cette différence de contraintes normales conduit à la définition de deux coefficients :

- . premier coefficient de contraintes normales

$$\psi_1(\dot{\gamma}) = \frac{\tau_{xx} - \tau_{yy}}{\dot{\gamma}_{xy}^2}$$

- . deuxième coefficient de contraintes normales

$$\psi_2(\dot{\gamma}) = \frac{\tau_{yy} - \tau_{zz}}{\dot{\gamma}_{xy}^2}$$

3. Viscosité complexe

Cette viscosité caractérise le comportement de la solution en régime dynamique.

Posons :

$$\dot{\gamma}_{xy} = \text{Re} [\dot{\gamma}_{xy}^0 e^{i\omega t}] \quad \text{avec} \quad \dot{\gamma}_{xy}^0 \text{ réel}$$

$$\text{d'où} \quad \dot{\gamma}_{xy} = \dot{\gamma}_{xy}^0 \cos \omega t$$

La contrainte de cisaillement étant notée :

$$\tau_{xy} = \text{Re} [\tau_{xy}^0 e^{i\omega t}] \quad \text{avec} \quad \tau_{xy}^0 \text{ complexe}$$

La viscosité η^* est alors définie par la relation :

$$\tau_{xy}^0 = -\eta^* \dot{\gamma}_{xy}^0$$

$$\text{avec} \quad \eta^* = \eta' - i\eta''$$

$$\text{d'où} \quad \tau_{xy} = \text{Re} [-(\eta' - i\eta'') \dot{\gamma}_{xy}^0 (\cos \omega t + i \sin \omega t)]$$

$$= -\eta' \cos \omega t \dot{\gamma}_{xy}^0 - \eta'' \sin \omega t \dot{\gamma}_{xy}^0$$

Expression dans laquelle le premier terme apparaît en phase avec le taux de cisaillement

$$\dot{\gamma}_{xy} = \dot{\gamma}_{xy}^0 \cos \omega t$$

η' correspond donc à la viscosité dynamique

Le deuxième terme est en opposition de phase.

η'' correspond donc à la contribution élastique.

A la place de la viscosité complexe, on utilise parfois le module de cisaillement complexe

$$G^* = i\omega\eta^* = G' + iG''$$

d'où les deux relations $G' = \omega\eta'$ $G'' = \omega\eta''$

4. Viscosité élongationnelle

Il existe un intérêt de plus en plus grand pour l'étude des écoulements élongationnels ou extensionnels. Ils correspondent par exemple, dans le cas d'une extension uniaxiale à une distribution de vitesse de la forme :

$$V_x = \dot{\epsilon} \cdot x \quad V_y = -(\dot{\epsilon}/2) \cdot y \quad V_z = -(\dot{\epsilon}/2) \cdot z$$

où $\dot{\epsilon}$ est le taux d'élongation supposé constant.

La vitesse élongationnelle est définie par :

$$\bar{\eta}(\dot{\epsilon}) = (\tau_{xx} - \tau_{yy}) / \dot{\epsilon}$$

Si $\dot{\epsilon}$ est petit $\bar{\eta} = 3\eta(\dot{\gamma})$
viscosité de Trouton

B. Mesure de la viscosité en cisaillement

1. Rhéomètre à cylindres coaxiaux

$$\tau_r = \frac{M}{2\pi h r^2}$$

où M est le moment
Mesure du couple M

2. Rhéomètre cône-plan

$$\tau = \frac{3M}{2\pi R^3}$$

mesure du couple M

3. Rhéomètre capillaire

mesure d'une force F
ou d'une pression p

C. Comportement en cisaillement

1. Comportement newtonien

η viscosité est une constante propre à la matière.

Cette constante est fonction de la température et de la pression.

Influence de la température

Pour les liquides, il y a diminution de viscosité lorsque la température augmente. Pour des huiles de haute viscosité, la variation peut atteindre 10% par degré. Ceci oblige lors des mesures à utiliser une thermostatisation de haute précision.

Pour les gaz, il y a en général augmentation de la viscosité avec la température.

Influence de la pression

La viscosité augmente avec la pression.

Le comportement newtonien est constaté pour l'eau, les huiles minérales, les détergents, les solutions de sucre, les bitumes et verre en fusion.

2. Comportement pseudo-plastique

La viscosité décroît lorsque le gradient de vitesse augmente.

Les substances ayant un tel comportement sont nombreuses : solutions de polymère, suspensions, dispersions, matières plastiques fondues, peintures, colles, adhésifs, laque, etc.

Ce changement de viscosité est dû, en général, à une modification de la structure. Exemple : comportement d'un liquide newtonien contenant des macromolécules rigides (batonnets).

Les forces hydrodynamiques ont tendance à orienter les macromolécules dans le sens de l'écoulement. Le mouvement brownien s'offre à cette orientation. Plus la vitesse augmente, (donc le taux de cisaillement $\dot{\gamma}_{xy}$), plus les molécules s'orientent et plus le frottement des molécules (donc la viscosité) diminue.

Un comportement pseudo-plastique est

souvent représenté par une loi d'OSTWALD :

$$\tau = k \dot{\gamma}^n \quad (n < 1)$$

3. Comportement dilatant

Un tel comportement est rare

4. Comportement plastique

Un tel comportement est fréquent : crèmes, chocolat, encre d'imprimerie, pâtes, suspensions à forte concentration. Toutes ces substances apparaissent fluides après un seuil d'écoulement τ_s

à partir duquel leur viscosité décroît lorsque le gradient de vitesse augmente.

5. Influence du temps de cisaillement

5.1. Thixotropie

La thixotropie se reconnaît facilement si le rhéogramme forme une boucle d'hystérésis.

Parmi les substances ayant un tel comportement signalons les produits pharmaceutiques et cosmétiques, les gels, les pom-mades, etc.

5.2. Rhéopexie

La viscosité augmente en fonction du temps. Un tel comportement est rare.

III. ETUDE D'ÉCOULEMENTS EN CANAUX FINS-MICRO-RHEOLOGIE.

Du fait des échelles à considérer maintenant, de tels écoulements doivent être étudiés avec l'intervention de nombreux paramètres mécaniques et physicochimiques. En particulier, on ne peut plus considérer le milieu comme continu et l'aspect polyphasique doit être pris en compte. D'un point de vue hydrodynamique, ils posent des problèmes spécifiques liés :

- à la rhéologie de la suspension et à la déformation éventuelle des particules
- aux caractéristiques mécaniques, structurales et géométriques du contenant
- aux régimes d'écoulement, pulsés, transitoires, intermittents, instables, etc.
- aux phénomènes de transfert de masse

Si on considère les écoulements dans des tubes de 15 à 100 μm de diamètre, la taille des particules n'est plus négligeable vis à vis de la section et il n'est plus possible d'employer les concepts classiques de Mécanique des Milieux Continus. Quatre aspects peuvent alors être remarqués :

- l'écoulement est diphasique : un noyau central riche en particules suspendues est entouré d'un manchon périphérique newtonien sans particules.
- le profil des vitesses est aplati dans la partie centrale.
- la concentration en particules circulant dans le tube est plus faible que celle qui règne dans le réservoir d'alimentation : c'est l'effet FAHRAEUS.
- la viscosité apparente diminue avec le rayon du tube : c'est l'effet FAHRAEUS-LINDQUIST.

A. Migration axiale des particules

Dans l'écoulement d'une suspension diluée de particules, les vitesses de translation et de rotation de ces particules sont modifiées près de l'interface fluide-parois. De plus, l'existence de l'interface induit une composante radiale (dans le sens paroi-axe) à la vitesse des particules. Il en résulte une migration de celles-ci situées à proximité de la paroi vers la partie centrale du canal. Ce phénomène est observé dans de nombreux cas d'écoulements de suspensions de particules déformables ou rigides de formes variées. Il convient cependant de faire une distinction entre la migration qui se produit dans un écoulement très lent et celle qui a lieu dans un écoulement à des nombres de REYNOLDS Re relativement élevés.

Cas des écoulements très lents : des études de GOLDSMITH sur ce phénomène ont montré, dans des écoulements à Re_b (associés à la particule) d'environ $\leq 10^{-4}$ ($Re_b = 2\rho b(U-u)/\eta_p$ avec U et u les vitesses de translation du fluide de la particule, ρ et η_p la masse volumique et la viscosité du fluide, b le rayon de la particule) le phénomène de migration axiale n'apparaît pas pour une particule sphérique rigide ; par contre, une goutte déformable se dirige vers l'axe quel que soit Re_b . Cette migration a lieu aussi pour des fibres et des filaments flexibles. La vitesse de migration croît avec le débit d'écoulement et la taille de la particule.

Cas des écoulements à débit plus grand :

L'influence des effets inertiels n'est alors plus négligeable. Cette nouvelle migration signalée par EIRICH a été ensuite étudiée quantitativement par SEGRE et SILBERBERG qui ont montré que pour $Re_b \geq 10^{-4}$, les particules sphériques rigides vont vers une position d'équilibre située à une distance radiale de 0,63 R à partir de l'axe du tube. Ceci suppose l'existence de forces centrifuges et centripètes qui se compensent approximativement au voisinage de cette zone d'équilibre. Il en résulte une accumulation de particules dans un manchon intermédiaire. Cet effet, dit "tubular pinch effect" se produit également pour des particules en forme de tiges ou de disques rigides, mais

n'apparaît pas pour des gouttes ou des fibres flexibles qui vont systématiquement vers l'axe du tube.

B. Écoulement périphérique-Profiles de vitesses

La migration axiale des particules implique une inhomogénéité de la concentration dans une section droite du tube. Dans l'écoulement, il se forme globalement un noyau central de concentration élevée en particules et un manchon périphérique qui en est pratiquement dépourvu. L'écoulement d'ensemble se fait donc en deux zones distinctes avec un profil de vitesses aplati dans la région centrale du tube. L'importance de la zone d'aplatissement dépend essentiellement de trois paramètres : la concentration, le débit et le rapport des dimensions des particules et du tube. Le profil des vitesses est d'autant plus plat que la taille des particules ou la concentration augmente. Cet aplatissement est relativement moins important pour des gouttes déformables par rapport aux particules rigides de même taille.

D'un point de vue purement rhéologique des modélisations fines ont été proposées à partir des théories sur les fluides micropolaires qui ont l'avantage de tenir compte, non seulement de l'écoulement d'ensemble, mais aussi des microrotations des particules. Malgré cela, il subsiste un certain nombre de questions sans réponse nette ; ainsi, de nouveaux paramètres peuvent intervenir tels que le rayon de giration des particules ou les paramètres de viscosité de translation ou de rotation qui, même s'ils sont connus, ont des influences respectives difficiles à caractériser. Des lois rhéologiques fines associées à des modèles diphasiques pourraient également être mises à profit pour modéliser les écoulements en canaux fins ; elles pourraient ensuite être utilisées pour déterminer les propriétés d'écoulements au niveau des échanges membranaires où la microcirculation joue un rôle capital.

CONCLUSION

Le panorama qui vient d'être présenté permet de ranger les milieux continus à l'aide de leur réponse et de leur comportement rhéologiques. Mais les comportements réels ne sont en fait que le résultat de la superposition et de l'imbrication des comportements de base, les uns prenant vis à vis des autres des places prépondérantes.

Ce phénomène, conséquence directe de la nature des fluides, dépend également nettement des sollicitations appliquées. Ainsi, les conclusions, bien que parfois complexes auxquelles on aboutit, restent souvent très subjectives. Mais n'en est-il pas de même toutes les fois que l'on cherche à schématiser les processus physiques et à modéliser, grâce à la Mathématique, les lois de la Nature ?

BIBLIOGRAPHIE

- GOLDSMITH H.L., MASON S.G. (1967)
"Rheology"
Ed. F.R. EIRICH, vol.5. New York, Academic,
- EIRICH F.R. (1956)
"Rheology"
1,2,3
New York
- METZNER A.B. (1961)
"Handbook of Fluid Dynamic"
New York
- PRAGER W. (1961)
"Introduction to mechanics of Continua"
Chicago
- REINER M. (1960)
"Deformation Strain and Flow"
London
- SEGRE S., SILBERBERG A. (1962)
"Behaviour of microscopic rigid spheres"
in J.Fluid.Mech vol.14, pp.115-157
- TOBOLSKY A.V. (1960)
"Properties and Structures of polymers"
New York

Discussion

Président : M. R. BUVET

M. APTEL signale que le « tubular pinch effet » est utilisé dans la modélisation des transferts en microfiltration.

M. BARNIER rappelle que trois problèmes se posent en rhéologie pour les membranes :

- les milieux en présence sont multiples
- la couche limite
- le milieu rhéologique de la couche limite

et qu'il faut essayer d'inclure ces données dans la construction de modèles même si ce sont des problèmes fort complexes.

M. BELLET donne l'exemple du sang, liquide hétérogène, qui ne se comporte pas de la même façon suivant le conduit dans lequel il circule. Pour un fluide industriel classique, l'importance de la rhéologie est capitale dans le cadre de la filtration. Et M. APTEL cite alors le cas du blanc d'œuf.

La discussion s'achève par une question de M. AUDINOS sur la part de l'enseignement de la rhéologie dans le secondaire et M. BELLET déplore que d'une façon générale, la mécanique trouve une place réduite dans les programmes du secondaire.