

## Solidification de suspensions : des forces thermomoléculaires aux effets granulaires

Alain Pocheau<sup>1</sup>, Brice Saint-Michel<sup>1,2</sup>, Marc Georgelin<sup>1</sup>, Sylvain Deville<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Aix Marseille Univ, CNRS, Centrale Marseille, IRPHE, Marseille, France

<sup>2</sup> Department of Chemical Engineering, Imperial College London, London SW7 2AZ, United Kingdom

<sup>3</sup> Ceramic Synthesis and Functionalization Lab, UMR3080, CNRS/Saint-Gobain, Cavailon, France

La solidification de suspensions, i.e. d'un mélange de particules et de fluide, se rencontre dans de nombreuses situations apparemment très diverses : les sols gelés, l'industrie alimentaire, la cryobiologie, ou la fabrication de matériaux biocomposites. Nous l'étudions ici dans un système modèle de solidification dirigée en lames minces permettant la visualisation du phénomène in situ.

En amont du front de solidification, nous observons la formation d'une couche dense de particules qui conditionne les évolutions du système. Son apparition résulte d'une force de répulsion, appelée force thermomoléculaire, induite par le front sur les particules. Son origine est électrostatique et sa portée nanométrique. Elle conduit les particules à être repoussées par le front de croissance jusqu'à ce que de nouvelles forces d'origine visqueuses permettent d'équilibrer la répulsion. Sa taille, fonction des paramètres de croissance et de l'ordre du millimètre, est physiquement reliée aux effets nanoscopiques de la force thermomoléculaire.

Après avoir documenté la densité et les tailles de cette couche de particules puis modélisé les forces et les équilibres en jeu dans le système, nous obtenons une première mesure indirecte des pressions thermomoléculaires dans ce système. L'étude des basses vitesses montre un changement de régime induit par friction des particules aux plaques par un analogue de l'effet Janssen des matériaux granulaires. Enfin, les variations de comportements induits par un changement d'épaisseur des plaques conduisent à modéliser la transition entre un ordre cristallin du réseau de particules près des plaques et un désordre loin de celles-ci. Au total, la compréhension de la physique de cette couche dense de particules permet d'envisager l'étude et la modélisation de sa dynamique couplée à celle du milieu dans des régimes d'intérêts généraux.

## Résultats

La suspension est composée de particules de polystyrène de 3 microns de diamètre, de densité 1,05, diluées dans l'eau à une fraction volumique de  $\phi_0=10$  ou 20%. Les températures imposées sont de 20°C sur un gap de 10mm. Les échantillons ont une partie utile de 45\*100 mm et la visualisation est réalisée par réflexion ou par transmission. Par réflexion, elle permet d'observer, près des plaques, la couche dense de particules séparant en régime de croissance le front de solidification et la suspension (Fig.1).

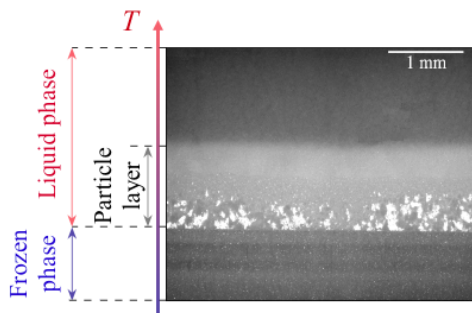


Fig. 1 : Image par réflexion de la couche dense de particules accumulées devant le front de solidification. Sa partie grise correspond à des arrangements désordonnés de particules et les spots brillants à des arrangements cristallins.  $\phi_0=20\%$ ,  $V=3 \mu\text{m/s}$ .

Au début de la croissance à vitesse  $V$ , les particules sont repoussées par le front et s'accumulent dans cette couche dont la hauteur  $h(t)$  croît linéairement, suite au flux  $\phi_0 V$  de particules venant de la suspension. Son taux de croissance permet alors une mesure indirecte de sa fraction volumique  $\phi$ . A une épaisseur d'échantillon de 125 microns, sa valeur  $\phi=0.63$  correspond à celle d'un amas compact désordonné de particules (random close packing). L'analyse en régime stationnaire du système montre que le saut de fraction volumique de  $\phi_0$  (la suspension) à  $\phi$  (la couche dense) s'accompagne de la formation dans celle-ci d'un différentiel de vitesse entre le fluide,

$v_f$ , et les particules,  $v_p$  (Fig. 2). Cela conduit dans ce milieu poreux à des effets visqueux induits par une vitesse de Darcy  $U=V(\phi_0 - \phi)/\phi$ . Ceux-ci s'accumulent le long de la couche et se transmettent par contact entre particules à celles voisines du front. Ces dernières se trouvent ainsi poussées à entrer dans la phase solide. Une autre force les y aide aussi : la force de lubrification induite dans le nanofilm séparant ces particules du front. En faisant le bilan de ces deux forces de capture et de la force thermomoléculaire de répulsion, on obtient une relation liant la hauteur  $h$  de la couche à sa vitesse de Darcy  $U$ , paramétrée par sa perméabilité.

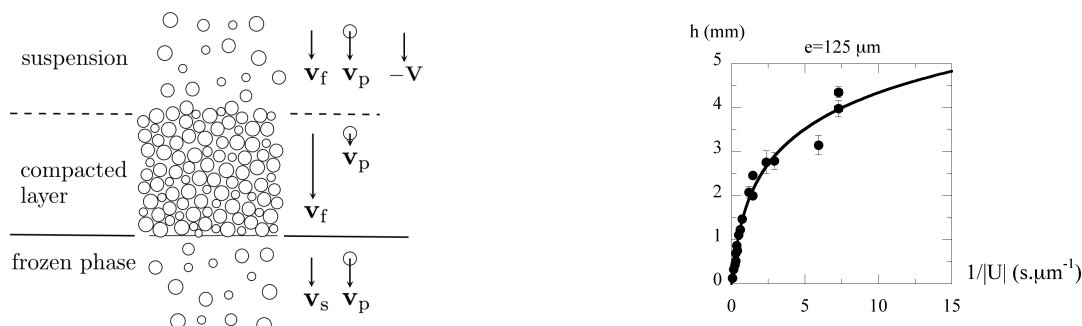


Fig. 2 (gauche) : Vitesse du fluide,  $v_f$ , et des particules,  $v_p$ , dans la suspension, la couche dense de particules et la phase solide. La vitesse de la phase solide est notée  $v_s$ .

Fig. 3 (droite) : Evolution de la hauteur  $h$  de la couche dense avec l'inverse de la vitesse de Darcy  $U$  pour un échantillon de  $125 \mu m$ . La ligne représente l'ajustement de la modélisation sur les données.

Les évolutions de  $h$  en fonction de  $1/U$  montrent une partie linéaire près de l'origine suivie d'une inflexion vers une croissance bien plus lente (Fig. 3). La relation précédente permet de retrouver la tendance linéaire et d'en déduire une première mesure indirecte de la pression thermomoléculaire induite par le front sur les particules.

L'inflexion observée en figure 3 est induite par les forces de friction entre plaques et particules. Ces forces, nulles à la frontière couche/suspension et maximales au niveau du front, présentent une augmentation exponentielle le long de la couche par un mécanisme analogue à l'effet Janssen selon lequel les matériaux granulaires se trouvent être soutenus par la friction aux parois dans les silos. Elles conduisent ici à une augmentation des forces de poussées des particules vers le front qui finit par supplanter les forces de friction visqueuse, conduisant ainsi à une quasi-stagnation de  $h$  à faible  $U$ .

L'analyse des courbes  $h(1/U)$  à différentes épaisseurs d'échantillons montre une évolution des pente à l'origine. Nous la corrélons à une modification de la fraction volumique des particules près des plaques, suite à l'ordre cristallin induit par leur planéité et leur impénétrabilité.

## Perspectives

Au total, la compréhension de la physique de la couche dense de particules formée au devant du front de solidification de suspensions permet d'envisager l'étude et la modélisation de sa dynamique, en lien avec les régimes observés en physique des sols ou en fabrication de matériaux.

## References 2017-2018

- Saint-Michel B., Georgelin M., Deville S. and Pocheau A., Interaction of Multiple Particles with a Solidification Front: From Compacted Particle Layer to Particle Trapping, *Langmuir* 33 (2017) 5617–5627.
- Saint-Michel B., Georgelin M., Deville S. and Pocheau A., Boundary-induced inhomogeneity of particle layers in the solidification of suspensions, soumis à *Phys.Rev.E*
- Saint-Michel B., Georgelin M., Deville S. and Pocheau A., Wall friction and Janssen effect in the solidification of suspensions, soumis à *Soft Matter*

**Remerciements** : Ces travaux ont été soutenus par le Conseil de Recherche européen (European Research Council) sous le septième programme-cadre européen FP7 (FP7/2007-2013)/ERC grant agreement 278004.