

Rhéologie

Co-éditrices

Sylvie Dagréou

IPREM, Université de Pau et des Pays de
l'Adour

2, avenue Pierre Angot, 64053 Pau Cedex 9
sylvie.dagreou@univ-pau.fr

Françoise Berzin

UMR FARE, Université de Reims Champagne
Ardenne & INRAE

Esplanade Roland Garros, 51100 Reims
francoise.berzin@univ-reims.fr

N° ISSN : 1763-5152

Compte tenu du rôle grandissant de la rhéologie dans de nombreux domaines, le Groupe Français de Rhéologie a souhaité renouveler sa revue pour en assurer une diffusion plus large et en faire un véritable lieu d'échanges entre industriels, chercheurs, mécaniciens, physiciens, chimistes, biologistes ou mathématiciens, qu'ils envisagent la rhéologie comme une science à part entière ou l'utilisent pour la caractérisation ou la production des matériaux.

Des articles touchant à des aspects théoriques, expérimentaux ou encore technologiques, de la rhéologie peuvent être soumis pour éventuelle publication dans *Rhéologie*. Les éditeurs décident, en s'aidant de l'avis des membres du comité éditorial, de l'opportunité de publication d'un article, après l'avoir soumis à au moins deux experts indépendants. Les membres du comité éditorial ont de plus un rôle de correspondants régionaux : ils peuvent orienter leurs collègues vers une éventuelle publication dans *Rhéologie*.

Les auteurs potentiels sont invités à transmettre leurs travaux sous forme électronique à Sylvie Dagréou ou Françoise Berzin. La langue principale est le français, mais les articles en anglais peuvent être acceptés s'ils comportent une version française abrégée en fin de texte. La longueur maximum souhaitée pour les articles est d'environ sept pages mais des articles plus longs peuvent être acceptés. Outre la version papier, diffusée aux abonnés et aux membres du GFR, une version électronique de la revue est disponible sur le site du GFR : www.legfr.fr. Il est demandé aux auteurs de suivre les consignes présentées en fin de volume.

La revue comprend également une partie d'informations générales concernant les activités touchant à la rhéologie (formations, soutenances de thèse, séminaires, congrès, nouveautés...). Les informations susceptibles d'être publiées sont à transmettre aux membres du comité de rédaction.

Sommaire

Les informations du GFR

Les informations techniques

Editorial

Résumés des présentations du Symposium « Matériaux complexes et interfaces »

Résumés des présentations du Webinar « Rheology and Food Structuring and Deconstructing »

Prix Maurice Couette 2020

De l'ancien monde des plastiques au nouveau monde des matériaux polymères :
une rhéologie intemporelle

1

P. Cassagnau

Articles réguliers

Conception d'une cellule de Couette excentrée transparente pour l'étude du
comportement d'écoulement de fluides visqueux à l'interface avec la paroi

9

*P. Thirunavukkarasu, R. Castellani, F. Fournier, E. Peuvrel-Disdier, A. Pignolet,
R. Valette, B. Vergnes*

Informations sur le Prix de Thèse et les Bourses du GFR

Consignes aux auteurs

Contents

From the old world of plastics to the new world of polymeric materials: Timeless rheology	1
<i>P. Cassagnau</i>	
Design of a transparent co- and counter-rotating eccentric Couette cell dedicated to study the interfacial flow behavior of viscous fluids	9
<i>P. Thirunavukkarasu, R. Castellani, F. Fournier, E. Peuvrel-Disdier, A. Pignolet, R. Valette, B. Vergnes</i>	

Les informations du GFR

Réunion du Conseil du GFR du 3 décembre 2020

La réunion se tient une fois de plus en visioconférence en raison de la crise sanitaire.

Une première discussion a lieu sur les statuts. En effet, l'article IX mentionne que « le Conseil est renouvelé au maximum par quart tous les ans. », soit cinq membres au maximum, alors qu'il peut potentiellement porter sur sept membres en 2023, puisque ce fut le cas en 2019. Alain Ponton et Jean-Charles Majesté acceptent de réexaminer les Statuts afin de proposer des solutions pour remédier à cette situation.

Céline Cohen (InPhyNi) et Rudy Valette organisent un webinaire « Fluids & Complexity » le 7 décembre à l'attention notamment des jeunes chercheurs. Celui-ci prévoit l'intervention de nombreux chercheurs de renom.

Un webinaire destiné aux (post-) doctorants, avec quelques conférenciers, sur le thème « Rheology for food (de)structuring » sera organisé par Guy Della Valle et Marco Ramaioli (INRAE SayFood), en mars 2021.

Un workshop « Rhéologie et biomédical » pourrait être organisé en présentiel à Lyon par Philippe Cassagnau et Philippe Connes.

Enfin, la tenue de l'ICR en distanciel du 14 au 17 décembre est évoquée par Romain Castellani. Le programme est disponible, il comporte plus de 200 présentations « flash » de 30 minutes, réparties en 11 sessions parallèles. La représentation française y sera significative via la participation de nombreux doctorants.

Le numéro de décembre de la revue *Rhéologie* comportera les résumés des candidatures au prix de thèse, ainsi qu'un article de Guy Della Valle, qui rédigera un « mot du président ». Le numéro de juin comportera l'article du récipiendaire du prix Maurice Couette 2020, ainsi que les résumés des colloques « Matière Complexe et Interfaces » et « Fluids & Complexity ». L'appel à proposer des articles pour la revue est ardemment renouvelé. Marie Daux accepte de prendre en charge la rubrique « Informations Technique ».

Mickaël Pruvost, ingénieur et docteur ESPCI, a contacté plusieurs membres du Conseil pour transmettre un questionnaire dans le cadre de son diplôme entrepreneurial (HEC) portant notamment sur la rhéométrie et la mesure des forces normales. Tetsuharu Narita prendra contact avec Mickaël Pruvost pour lui demander de présenter sa démarche lors d'une prochaine réunion.

Réunion du Conseil du GFR du 25 janvier 2021

Comme les précédentes, cette réunion se tient par visioconférence.

Tetsuharu Narita nous informe d'un webinaire qu'il organise sur les « gels et les réseaux de polymères » avec Evelyne van Ruymbeke le 29 janvier 2021. D'autres suivront sur des sujets connexes, une à deux fois par mois. Il nous fait part également de son intention d'organiser avec Guylaine Ducouret un séminaire sur le thème « Couplage rhéologie et autres méthodes » en juin,

sans doute en distanciel.

Un webinaire pour jeunes chercheurs « Rheology for food (de)structuring » organisé par Marco Ramaioli et Guy Della Valle se tiendra jeudi 18 mars. Rudy Valette rappelle que le Congrès Français de Mécanique, qui se déroulera à Nantes fin août, comportera une session « Mécanique des fluides complexes », qu'il animera avec d'autres collègues (T. Burghlea, P. Coussot, S. Le Corre, C. Métivier).

Les communications au webinaire « Matière complexe et interfaces » seront bientôt mises en ligne par Alain Ponton. Frédéric Pignon mentionne le succès de la journée pluridisciplinaire sur les « Protéines » (19 janvier), organisée dans le cadre du GdR SLAMM et qui a compté une centaine de participants ; un blog sera constitué pour rendre accessibles les nombreuses questions posées à l'issue des communications et lors des tables rondes.

Le prochain évènement de ce GdR se tiendra du 2 au 5 novembre à Biarritz.

Sylvie Dagrèou rappelle le sommaire du prochain numéro (fin juin) de la revue *Rhéologie*, tel qu'annoncé dans le CR de la réunion du 3 décembre, et soulève la question de la présence d'un seul article. Plusieurs intentions de fournir un article pour les prochains numéros sont exprimées. L'intérêt pour un doctorant par exemple d'écrire un premier article scientifique en français est rappelé.

Pour rendre « l'Encyclique » plus attractive, Guy Della Valle pro-

pose d'insérer des parcours répondant à des questions-type (analogues à FAQ) qui seraient ensuite implémentées par C. Fernandez (INRAE, Bordeaux). Jean-Charles Majesté et René Fulchiron, qui l'ont déjà utilisé avec leurs étudiants, proposent de contribuer à cette tâche. La présentation (le design) de l'outil est aussi évoqué, il pourrait faire l'objet d'un stage de Master.

L'évolution des statuts sera évoquée à la prochaine réunion.

L'annonce pour le prix de thèse sera lancée sous peu, avec demande de fourniture d'un dossier numérique.

M. Pruvost (ESPCI-HEC) sera sollicité par Tetsuharu Narita pour faire une présentation. Jean-Baptiste Boitte précise qu'il travaille dans l'équipe de Annie Colin à la mise au point d'un rhéomètre équipé de capteurs de pression qui permet de mesurer simultanément les deux différences de contraintes normales.

Congrès Annuel du GFR

Bordeaux, 26-28 octobre 2021



Le congrès annuel du Groupe Français de Rhéologie correspond au report de l'édition 2020, annulée en raison de l'épidémie de Covid-19. Il est ouvert aux membres et non-membres du GFR. Il se tiendra pendant trois jours, du 26 au 28 octobre 2021, à l'Université de Bordeaux, dans l'Agora du Domaine du Haut-Carré sur le campus universitaire. Il sera précédé des short courses qui auront lieu le 25 octobre dans les locaux du campus bordelais

de l'ENSAM et qui auront pour thème « Approches locales en rhéologie ».

Ce congrès, à session unique, permet à des doctorants, post-docs et chercheurs confirmés de présenter, sous forme de communications orales ou par affiches, les résultats de leurs travaux récents dans tous les domaines de la rhéologie.

Quatre chercheurs ayant apporté une contribution originale à la rhéologie sont invités à donner une conférence plénière :



Olivier Pitois,
Laboratoire Navier,
*Rheology of
foamed suspensions*



Kirsten Martens,
LIPhy,
Mesoscale modeling for soft glassy rheology



Alba Marcellan,
ESPCI
Renforcement mécanique de gels par interactions sacrificielles réversibles

et le récipiendaire du Prix Maurice Couette.

Pendant ce congrès, sera mis à disposition un espace pour des discussions informelles et conviviales autour d'expositions d'instruments et de sessions posters. Au cours du dîner de gala seront remis le Prix Maurice Couette, le Prix de thèse du GFR et le Prix de la meilleure affiche.

Dates importantes

Date limite de soumission :
9 mai 2021

Acceptation des résumés :
2 juillet 2021

Fermeture des inscriptions :
24 septembre 2021

Tarifs (jusqu'au 18 juillet 2021, les prix seront ensuite majorés de 30 €).

L'inscription inclut l'accès aux sessions, le cocktail de bienvenue, les pauses-café, les déjeuners et le dîner de gala.

Etudiant ou postdoc, membre du GFR 200 €

Sénior, membre du GFR 320 €

Non membre du GFR 400 €

Short courses

Etudiant ou post-doc 75 €

Industriels 150 €

Contacts

gfr2020@services.cnrs.fr
<http://2020.legfr.fr>

université
de BORDEAUX



Youngs Rheologists Days (YRD)

Giron, 6-9 juillet 2021

En raison de la situation mondiale concernant la COVID-19, il a été décidé de reporter les YRD « Journées des Jeunes Rhéologues » (initialement prévues du 16 au 19 juin 2020, puis reportées au 09-12 mars 2021) du 6 au 9 juillet 2021. L'organisateur Khalid Lamnawar espère que le problème de la pandémie sera

résolu d'ici là et que les restrictions de voyage auront disparu.

Avec le soutien de la Société européenne de rhéologie (ESR) et du Groupe Français de Rhéologie (GFR), les nouvelles YRD 2021 seront organisées dans le même centre de conférence, à Giron, dans le Jura.

Un programme social varié et actualisé accompagnera la conférence, avec des visites de plusieurs usines et institutions régionales.

L'objectif principal de cette conférence est d'établir un forum de discussion pour la communauté de jeunes ingénieurs et scientifiques dans tous les domaines de la rhéologie.

Il a été décidé de conserver tous

les résumés déjà proposés et le processus d'inscription tel qu'il était initialement prévu. À ce jour, plus de 80 résumés ont été reçus, de France et de nombreux autres pays (Italie, Pologne, Maroc, Roumanie, Chine, Israël, Portugal, Espagne, Colombie, Tunisie, Canada, Espagne, Allemagne, Royaume-Uni, Grèce, USA, Suisse...). La conférence comprendra cinq conférenciers invités : Jan Vermant (ETH Zurich), Anke Lindner (ESPCI Paris), Rudy Valette (MINES ParisTech), Denis Roux (LRP-UGA) et Joao Maia (CWRU, Cleveland, USA). Dix autres Keynotes seront également présentées par d'éminents chercheurs des universités et de l'industrie. Pour les personnes déjà inscrites en 2020, les inscriptions seront automati-

quement transférées à YRD 2021. Pour les nouveaux participants, la date limite d'inscription a été prolongée au 15 mai 2021. Si vous prévoyez de participer, veuillez vous inscrire dès que possible sur le lien suivant :

<https://colloque.insavalor.fr/JJR2020/Inscription.html>

Le forfait complet de la conférence (280 € jusqu'au 15 mai) comprend la chambre d'hôtel, le petit-déjeuner, le déjeuner et le dîner, la réception de bienvenue, les pauses café, les activités sociales et le banquet.

Pour plus de détails :

<https://jjr2020.sciencesconf.org/>

Les informations techniques

NETZSCH – la nouvelle maison des rhéomètres rotationnels Kinexus et des rhéomètres capillaires Rosand.

Mesure des propriétés rhéologiques de liquides non-newtoniens et de solides mous – de la formulation à l'utilisation

Découvrez davantage d'informations sur :

www.netzsch.com/rheology



Téléchargez la version GRATUITE de notre recueil sur la Rhéologie Rotationnelle et apprenez comment les propriétés d'écoulement des produits peuvent être déterminées par leur analyse rhéologique

www.netzsch.com/rheology-booklet



Vos informations

Cette rubrique est ouverte à tous les fournisseurs de matériel, rhéomètres, matériaux, désireux de faire connaître leurs innova-

tions, des évolutions de gammes, des méthodes de traitement ou d'analyse...

Transmettez vos textes et illustrations à :

Marie Daux

URGO SAS
42 rue de Longvic
21300 Chenove
m.daux@fr.urgo.com

Editorial

La rhéologie est une science très riche et diverse, aux domaines d'application très variés. Au sein de notre société savante, cette diversité est largement représentée. S'il était besoin de s'en convaincre à nouveau, le numéro 39 de *Rhéologie* en fournit un bel exemple.

Vous y trouverez tout d'abord les résumés du symposium « Matériaux complexes et interfaces », organisé le 29 octobre 2020 par Isabelle Hénaut, Imane Boucenna et Alain Ponton, et du webinaire « Rheology and Food Structuring & Deconstructing », organisé le 18 mars 2021 par Marco Ramaioli et Guy Della Valle. Outre la variété d'objets d'étude couverte par ces deux événements, vous apprécierez également la richesse des approches, très fondamentales ou très applicatives, et le plus souvent combinées.

Au cœur de ce numéro, et comme il est de tradition, vous lirez l'article proposé par Philippe Cassagnau, récipiendaire du prix Maurice Couette 2020. Intitulé « De l'ancien monde des plastiques au nouveau monde des matériaux polymères : une rhéologie intemporelle », il retrace l'histoire des plastiques mais surtout de la rhéologie des polymères... En réalité Philippe Cassagnau nous propose bien plus que cela : il nous invite à regarder l'évolution de la science des polymères, sans rien éluder des problématiques environnementales, ni de la riche complexité du lien entre recherche fondamentale et recherche appliquée. Merci à l'ancien élève de l'école communale de Castetpugon (Pyrénées Atlantiques) pour cette intéressante mise en perspective !

Le numéro 39 se referme sur un article de P. Thirunavukkarasu, R. Castellani, F. Fournier, E. Peuvrel-Disdier, A. Pignolet, R. Valette et B. Vergnes, intitulé « Conception d'une cellule de Couette excentrée transparente pour l'étude du comportement d'écoulement de fluides visqueux à l'interface avec la paroi ». Il s'agit du développement d'un prototype pour observer le comportement en écoulement de fluides visqueux sous cisaillement avec des surfaces libres. Ce bel article vient nous rappeler que le développement instrumental et l'observation sont partie intégrante du dynamisme de la rhéologie. Les premières observations qui y sont présentées sont prometteuses : nous attendons la suite avec impatience !

Françoise Berzin

Sylvie Dagréou

Editrices



Ce workshop, organisé à l'Université de Paris en partenariat avec IFP Energies nouvelles et sous l'égide du Groupe Français de Rhéologie avait pour objectif d'établir le lien entre les interfaces et les propriétés macroscopiques des systèmes multiphasiques. En effet, les matériaux dits complexes comme les émulsions, les microémulsions, les gels et les mousses ont une structure à différentes échelles et présentent de nombreuses interfaces qui jouent un rôle primordial dans leurs propriétés macroscopiques. Ces interfaces composées de protéines, de surfactants ou de particules auto-assemblées peuvent en effet présenter des propriétés mécaniques complexes et la connaissance de leur comportement dynamique est essentielle. Caractériser la microstructure et les propriétés rhéologiques des couches formées représente un enjeu scientifique en raison de leur faible épaisseur et de leur réponse viscoélastique non-linéaire. De nombreuses questions scientifiques sont d'actualité et intéressent non seulement le monde académique mais aussi le monde industriel avec les nombreuses applications de ces matériaux dans les domaines de l'agroalimentaire, des cosmétiques, de l'énergie, de la pharmacie, du génie des procédés, etc. Avec environ 170 inscriptions dont 39 doctorants et 43 industriels, ce workshop a connu un large succès en favorisant les échanges sur des travaux en lien étroit entre la recherche et l'innovation.

Isabelle Hénaut, Imane Boucenna, Alain Ponton

Programme de la journée

09h00 – 9h15	Introduction
09h15 – 9h50	<i>Jan Vermant</i> , Thin films dynamics, coalescence and rheology
09h50 – 10h25	<i>Moshe Gotlieb</i> , Block copolymers at oil / water interfaces: dynamics, rheology, and spontaneous emulsification
10h25 – 11h00	<i>Matthieu Robert de Saint Vincent</i> , La rhéologie au service de l'évaluation sensorielle de formules cosmétiques
11h00 – 11h35	<i>Thibault Roques-Carmes, Philippe Marchal</i> , La démarche procédés, processus, propriétés, produits, appliquée aux émulsions de Pickering
13h30 – 14h05	<i>Valentin Leroy</i> , Propagation acoustique dans les mousses liquides et solides
14h05 – 14h40	<i>Sylvain Faure</i> , Rhéologie des mousses aqueuses : de la formulation à l'application
14h40 – 15h15	<i>Sylvain Gressier</i> , Particle sedimentation velocity and dispersion stability as a function of the continuous phase rheology
15h15 – 15h50	<i>Isabelle Hénaut</i> , Caractérisation rhéologique d'interfaces et leur influence à grande échelle

Thin films dynamics, coalescence and rheology

E. Chatzigiannakis, J. Vermant

Department of Materials, ETH Zürich, Switzerland

The thinning and rupture of thin liquid films is a ubiquitous process, controlling the lifetime of bubbles, antibubbles and droplets. A better understanding of thinning and rupture is important for controlling and modelling the stability of multiphase products. In this work, we will discuss the use of a microfluidic thin film balance to vary the ratio of hydrodynamic to capillary stresses and its role on the dynamics of thin liquid films. Varying the pressure drop across planar films allows us to control the ratio of the two competing timescales, i.e. a controlled hydrodynamic drainage time and a timescale related to fluctuations. Thickness fluctuations are visualized and quantified, and their characteristics are directly measured experimentally for varying strengths of the flow inside the film. We show how the criteria for rupture depend on the hydrodynamic conditions, changing from stochastic to deterministic as the hydrodynamic forces inside the film damp the fluctuations. Furthermore, we discuss the interplay between capillarity, hydrodynamics and the possible role of interfacial rheology in coalescence. For polymer films, the role of possible osmotic forces in stabilizing films appears as possible novel mechanism by which thin film life time is controlled.

Chatzigiannakis, E., Vermant, J. Breakup of thin liquid films: From stochastic to deterministic, *Phys. Rev. Lett.*, 125, 158001 (2020).

Chatzigiannakis, E., Veenstra, P., Ten Bosch, D., Vermant, J. Mimicking coalescence using a pressure-controlled dynamic thin film balance, *Soft Matter*, in press (2020).

Block copolymers at oil/water interfaces: dynamics, rheology, and spontaneous emulsification

M.L. Davidson¹, L. Laufer², L.M. Walker¹, M. Gottlieb²

¹ *Chemical Engineering Dept., Carnegie Mellon University, USA*

² *Chemical Engineering Dept, Ben Gurion University, Israel*

The connection between block copolymer architecture and adsorption at fluid/fluid interfaces is poorly understood. We characterize the interfacial properties of a well-defined series of polyethylene oxide/polydimethyl siloxane (PDMS) diblock and BAB triblock copolymers at the dodecane/water interface. They are oil-soluble and quite flexible because of their hydrophobic PDMS block. Rather than relying on equilibrium interfacial measurements for which it is difficult to mitigate experimental uncertainty during adsorption, we combine measurements of steady-state adsorption, dilatational rheology, and adsorption/desorption dynamics. Steady-state interfacial pressure is insensitive to interfacial curvature and mostly agrees with theory. Adsorption does not occur in the diffusive limit as is the case for many aqueous, small-molecule surfactants. Dilatational rheology reveals differences in behavior between the diblocks and triblocks, and all interfaces possess elasticities below the thermodynamic limit. Desorption dynamics show that material exchange between the interface and the neighboring fluid occurs too slowly to relax dilatational stresses. The mechanism of relaxation occurs at the interface, likely from the reorientation of adsorbed chains [1]. Interestingly, we find a yet unresolved relation between interfacial properties and tendency for spontaneous emulsification in the oil phase.

[1] M.L. Davidson, L. Laufer, M. Gottlieb, L.M. Walker, Transport of flexible, oil-soluble diblock and BAB triblock copolymers to oil/water interfaces, *Langmuir*, 36, 7227–7235 (2020).

La rhéologie au service de l'évaluation sensorielle de formules cosmétiques

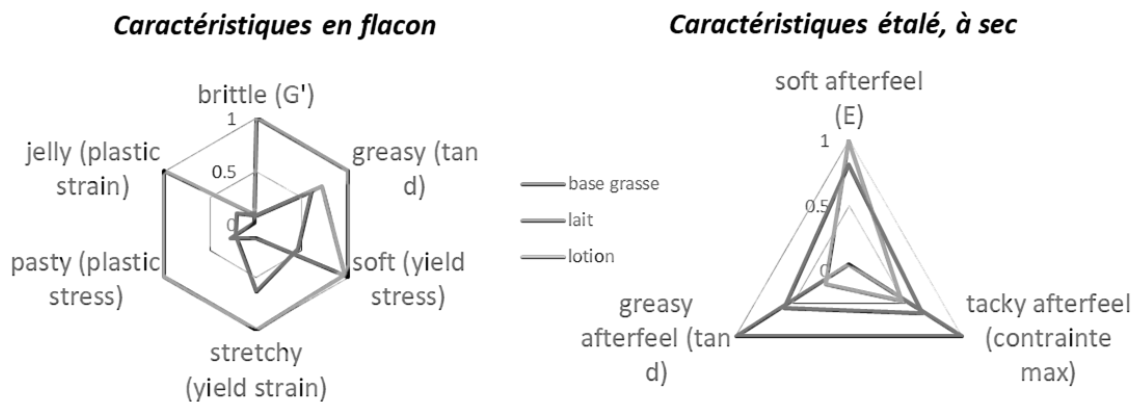
G. Darsy, M. Obamba, M. Robert de Saint Vincent, J. Patarin

Rheonova, domaine universitaire, 1270 rue de la piscine, 38400 Saint Martin d'Hères

L'évaluation des propriétés sensorielle de formulations cosmétiques s'inscrit dans le champ d'application de la rhéologie. À l'heure actuelle cependant, les formulateurs de produits cosmétiques se limitent à des mesures de viscosité à vitesse donnée pour évaluer ces propriétés. Or, ces mesures ne correspondent pas nécessairement à la perception du consommateur et ne permettent pas de prédire les comportements de ces formulations après leur usage. L'objectif de cette étude est d'associer des grandeurs rhéologiques à des propriétés sensorielles évaluées par un jury d'évaluation, notamment sur les critères après usage, « afterfeel ».

L'étude est menée sur trois produits dermocosmétiques : une base grasse, un lait solaire et une lotion. Des mesures rhéologiques en oscillation réalisées pendant 30 min avec un plan supérieur ajouré permettent d'extraire les propriétés viscoélastiques linéaires en sortie de flacon et pendant le séchage forcé. Enfin, un test de traction permet de déterminer la contrainte extensionnelle à la rupture du film de produit, reliée à la sensation tactile après étalement sur la peau.

Ces caractérisations permettent d'établir un profil sensoriel comparatif entre les produits (figure). Le caractère gras apparaît nettement sur la base grasse (tant en flacon qu'à sec), qui est également molle et déformable mais très peu pâteuse, et finalement collante une fois sèche. Inversement, le lait solaire apparaît pâteux et gélifié en flacon, mais très peu élastique, tout en laissant une impression de douceur sur la peau. La lotion présente un profil intermédiaire.



Profil sensoriel des trois produits analysés selon leurs valeurs rhéologiques normalisées

La démarche Procédés, Processus, Propriétés, Produits appliquée aux émulsions de Pickering

T. Roques-Carmes, F. Velandia-Rodriguez, D. Ramos, M. Lebrun, C. Lemaître, V. Sadtler, P. Marchal

Université de Lorraine, Laboratoire Réactions et Génie des Procédés, UMR 7274 CNRS, 1 rue Grandville, 54001 Nancy Cedex

Le génie des produits vise à gérer de façon optimale la complexité inhérente à l'association de plusieurs constituants pouvant être incompatibles, en vue d'élaborer un produit possédant des propriétés ou fonctions d'usages qui peuvent être de nature organoleptiques, thérapeutiques, cosmétiques ou mécaniques, par exemple. Il a pour objectif de développer des nouveaux produits formulés basés sur leurs propriétés d'usage en relation avec les consommateurs. Dans ce contexte, notre ambition est de mettre en place des méthodes quantitatives permettant d'établir un lien formel entre les différentes échelles spatiales des systèmes multiphasiques, afin d'être en mesure de concevoir un procédé et une formulation en fonction des propriétés d'usage recherchées d'un produit. En d'autres termes, cette approche ambitionne d'établir des liens entre les propriétés des constituants à l'échelle moléculaire, aux interfaces, les propriétés structurales des matériaux à l'échelle colloïdale et les propriétés d'usage des produits à l'échelle macroscopique, en intégrant le procédé à toutes les échelles, selon le schéma suivant (Fig. 1).

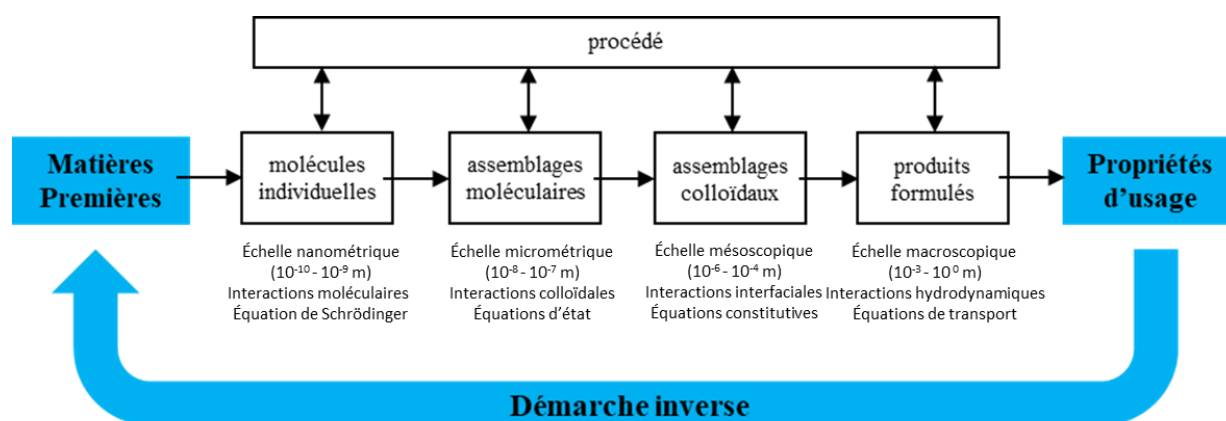


Figure 1. Approche multi-échelles en génie des produits

Dans cette démarche globale multi-échelles, notre approche méthodologique est basée sur le couplage entre le procédé de fabrication, la formulation, les phénomènes se produisant aux interfaces ainsi que la rhéologie (Fig. 2). Chacune de ces opérations correspond à une échelle spatiale particulière (Fig.1). L'échelle nanométrique est celle de la formulation qui correspond à celle des tensioactifs ou des nanoparticules. L'échelle micrométrique a pour objectif de sonder les phénomènes aux interfaces tels que l'adsorption des nanoparticules et des tensioactifs à la surface des gouttes d'huile. L'échelle mésoscopique tient compte de l'interaction entre les gouttes et peut-être étudiée via la rhéologie volumique. Enfin, l'échelle macroscopique correspond à l'échelle effective du produit et inclut généralement le procédé de fabrication et de mise en forme du produit.

Cette démarche va être appliquée dans le cas des émulsions de Pickering. Il s'agit d'émulsions pour lesquelles la stabilité est assurée par la présence de particules solides fortement ancrées à l'interface. Les émulsions obtenues sont plus stables que leurs homologues classiques, stabilisées par des molécules tensioactives. En effet, elles possèdent une plus grande élasticité interfaciale due à la présence des particules qui rendent l'interface « solide » et très robuste. Ces systèmes connaissent actuellement un regain d'intérêt, notamment pour des raisons écologiques, afin de limiter le recours aux tensioactifs de synthèse.

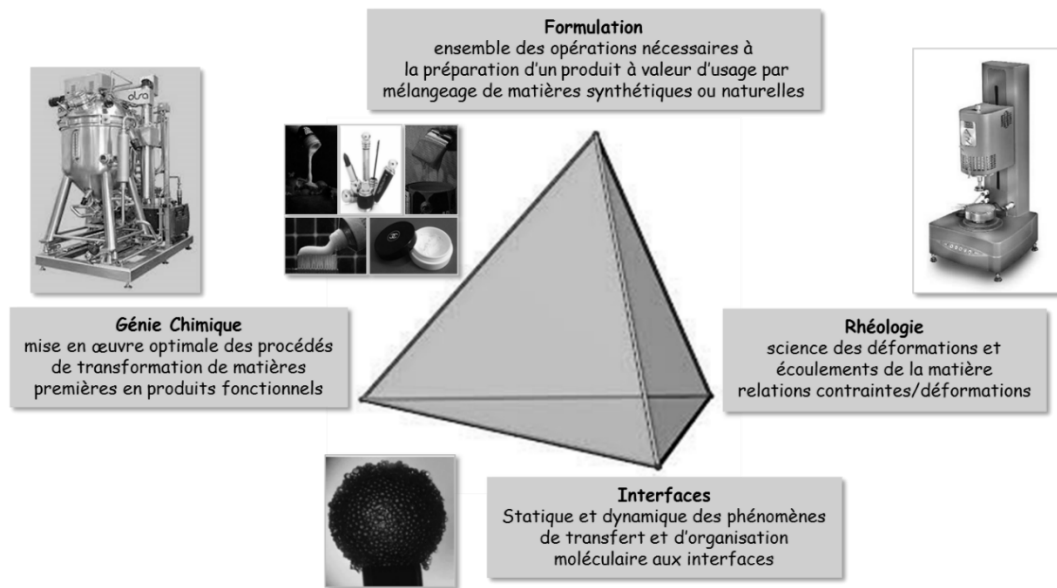


Figure 2: Approche multidisciplinaire en génie des produits

Propagation acoustique dans les mousses liquides et solides

C. Gaulon¹, J. Pierre², C. Derec¹, F. Elias¹, V. Leroy¹

¹ Laboratoire MSC, Université de Paris/CNRS

² IJLRDA, Sorbonne Université/CNRS

Les ondes acoustiques peuvent être un outil précieux pour caractériser les milieux complexes. Dans la limite dite basses fréquences, c'est-à-dire quand la longueur d'onde est grande devant la taille typique des inhomogénéités du milieu, on peut adopter une description de milieu homogène effectif : tout se passe comme si le son se propageait dans un milieu homogène, mais avec une vitesse et une atténuation effectives, qui dépendent de la composition et de la structure du milieu.

Nous avons appliqué cette idée aux mousses liquides, avec pour objectif de créer une sonde acoustique, capable de renseigner sur la composition d'une mousse en mesurant la vitesse et l'atténuation du son en fonction de la fréquence. Nous avons montré que, à très basses fréquences, la vitesse suivait bien la loi dite de mélange, c'est-à-dire une vitesse calculée à partir des compressibilité et densité moyennes du milieu [1]. Mais, à plus hautes fréquences, nous avons mis en évidence une résonance, avec un maximum d'atténuation et un changement de régime de propagation [2].

L'existence de cette résonance (toujours à grande longueur d'onde) signifie que les mousses liquides sont des métamatériaux acoustiques, dont les propriétés pourraient être utilisées pour l'isolation phonique. Cependant, pour des applications pratiques, le caractère éphémère des mousses liquides est une limitation forte. Nous avons donc étudié des mousses solides dites « à membranes ». Ces mousses solides ne présentent pas les mêmes résonances que leurs cousines liquides, mais leurs performances acoustiques demeurent prometteuses pour des applications d'isolation phonique [3].

[1] J. Pierre, R.M. Guillermic, F. Elias, W. Drenckhan, V. Leroy, Acoustic characterisation of liquid foams with an impedance tube, *Eur. Phys. J. E*, 36, 113 (2013).

[2] J. Pierre, B. Dollet, V. Leroy, Resonant acoustic propagation and negative density in liquid foams, *Phys. Rev. Lett.*, 112, 148307 (2014).

[3] C. Gaulon, J. Pierre, C. Derec, L. Jaouen, F.X. Becot, F. Chevillotte, F. Elias, W. Drenckhan, V. Leroy, Acoustic absorption of solid foams with thin membranes, *App. Phys. Lett.*, 112, 261904 (2018).

Rhéologie des mousses aqueuses : de la formulation à l'application

S. Faure, L. Desbordes, F. Frances, A. Grandjean

CEA, DEN, Univ.Montpellier, DE2D, SEAD, LPSD Marcoule, 30207 Bagnols sur Cèze

Les mousses aqueuses sont des fluides complexes qui contiennent des bulles de gaz (air le plus souvent) dispersées dans une phase liquide aqueuse continue. Elles peuvent également être triphasiques et contenir des particules solides. La complexité de leur composition chimique en termes de type de tensioactifs, de type de particules ou de gaz leur confère des propriétés rhéologiques très variées qui sont mises à profit dans diverses applications.

Ainsi, on peut citer de manière non exhaustive et à titre illustratif, la mousse éphémère de shampoing qui se forme et s'écoule rapidement sous la contrainte manuelle, les mousses à raser qui adhèrent en couche sur la peau, malgré l'effet de la gravité, les mousses stables et élastiques de l'agroalimentaire (mousses au chocolat ou Chantilly) qui ne coulent pas et qui adhèrent à la cuillère, les mousses de flottation en papeterie qui s'élèvent dans une colonne et transportent des particules d'encre grâce à la viscoélasticité des bulles, et les mousses de décontamination du CEA en remplissage statique suffisamment stables sous la gravité pour dissoudre un dépôt irradiant pendant plusieurs heures [1-2].

Pour les applications brevetées qui intéressent le CEA en décontamination radiologique, la mousse peut être utilisée dans diverses configurations de contraintes (cisaillement de 10^{-1} s^{-1} à 10^5 s^{-1}) : en tas sur une surface horizontale, en remplissage d'un contenant, en adhésion en couche sur une paroi verticale, en circulation dans une tuyauterie, en ascension dans une colonne de flottation, en pulvérisation. A chaque fois, les réponses de déformation, de stabilité et de rigidité des mousses sont alors étroitement couplées à la physico-chimie des additifs (tensioactifs, polymères et particules) utilisés en formulation.

L'exposé détaillera plus particulièrement deux configurations de contraintes pour les mousses:

- en remplissage statique pour la décontamination de cuves ou générateurs de vapeur, en partenariat avec ORANO, où le drainage libre sous l'effet de la gravité peut être contrôlé par l'ajout d'un polymère rhéofluidifiant [2] ;
- en flottation pour la décontamination de sols radioactifs [3], où la quantité de tensioactif collecteur cationique influence directement la stabilité et la fraction liquide des mousses de particules d'argiles en ascension dans une colonne [3-4].

[1] S. Faure, B. Fournel, P. Fuentes, Brevet WO2004/08463 (2004).

[2] C. Dame, C. Fritz, O. Pitois, S. Faure, Relations between physicochemical properties and instability of decontamination foams, , Colloid Surf. A, 282, 65-74 (2005).

[3] S. Faure, M. Messalier, Brevet WO2013/167728A1 (2013)

[4] Chapelain, J.C.M., S. Faure, D. Beneventi, Clay flotation: Effect of TTAB cationic surfactant on foaming and stability of illite clay microaggregates foams, Indus. Eng. Chem. Res., 55, 2191-2201 (2016).

[5] A.Ben Said, F. Frances, A. Grandjean, C. Latrille, S; Faure, Study of a foam flotation process assisted by cationic surfactant for the separation of soil clay particles: Processing parameters and scaling-up sensitivity *Chem. Eng. Proc.: Process Intens.* 142, 1075472 (2019).

Caractérisation rhéologique d'interfaces et leur influence à grande échelle

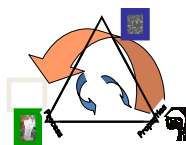
M. Abdallah, J-M Claveau, C. Dalmazzone, I. Hénaut

IFP Energies nouvelles, 1 & 4 avenue de Bois Préau, 92500 Rueil-Malmaison

Les milieux diphasiques tels que les émulsions ou les mousses se caractérisent par la présence d'interfaces qui jouent un rôle prépondérant sur leur stabilité. La rhéologie interfaciale de cisaillement, c'est-à-dire à aire maintenue constante, permet de caractériser ces films. Des essais ont été menés en bicône et en anneau double paroi.

La configuration liquide/gaz a été testée sur des systèmes à base d'hydrophobines pour lesquels la littérature est abondante et a pu servir de références. Ces protéines sécrétées par des champignons filamenteux forment des films viscoélastiques de stabilité remarquable, pouvant être mis à profit dans les secteurs cosmétiques, alimentaires, textiles etc. Elles sont cependant coûteuses et leur mélange avec des protéines plus classiques est à l'étude. Nous avons ainsi caractérisé des films d'hydrophobines seules et en mélange avec des albumines de sérum bovin et avons pu constater que les bonnes propriétés interfaciales pouvaient être maintenues en mélange.

La configuration liquide/liquide a été testée avec des interfaces eau/solvant organique contenant des asphaltènes. Ces systèmes intéressent notamment la gestion des eaux de production pétrolière dont la séparation et le traitement sont impactés par la présence des asphaltènes. Avec les géométries bicône et anneau à double paroi, nous avons pu caractériser le comportement élastique prépondérant des interfaces formées par les asphaltènes.



Webinar « Rheology and Food Structuring & Destructuring »

18 mars 2021

Ce webinar a été co-organisé sous l'égide du GFR par Marco Ramaioli (INRAE-SayFood) et Guy Della Valle (INRAE-BIA), avec le programme suivant :

- 9:10 Keynote Lecture : *Jianshe Chen*, Destructuring of food during oral processing
- 9:40 *Anaïs Lavoisier*, Effect of the bolus extensional properties on in vitro swallowing
- 10:00 *Florence Gibouin*, Rheological properties of artificial boluses of cereal foods enriched with legume proteins to quantify food-saliva interactions
- 10:20 *Rohit Srivastava*, Ultrasound based mechanical characterization of the tongue-food system during the course of uniaxial compressions
- 11:00 *Dimitros Bikos*, Impact of micro-aeration on the bulk mechanical properties of chocolates and link with oral processing
- 11:20 *Imen Jebalia*, Microstructure and local mechanical properties of starch / protein composites
- 11:40 *Guillaume Darsy*, Textural comparative analysis of foodstuffs: Case of smoked salmons
- 12:00 *Floor Schreuders*, Rheological properties of plant proteins for meat analogues
- 14:00 Keynote Lecture : *Arnaud Saint-Jalmes*, Foams and emulsions rheology: from basics to food applications
- 14:30 *Camille Demoulin*, Dynamic rheology for the determination of the specific energy of cohesion between fruit juices suspended solids for a relevant choice of hydrodynamic conditions in crossflow filtration
- 14:50 *Noémie Ourvois-Maloisel*, Emulsions solely stabilized by soybean fibers : phase diagram and rheological studies
- 15:10 *Emma Hinderink*, Rheological behavior of protein-stabilized fluid interfaces: From sub-second to hours
- 16:00 *Jian Kuang*, Rheological properties of thermal gels of pea and egg white protein mixtures
- 16:20 *Julie Bloquet-Maurras*, Multi-scale approach to study crystallization behavior of cocoa butter-copra oil blends
- 16:40 *Miarka Sinkora*, The measure of rheology highlights the role of agricultural practices on the control of textural quality on industrial tomato purees

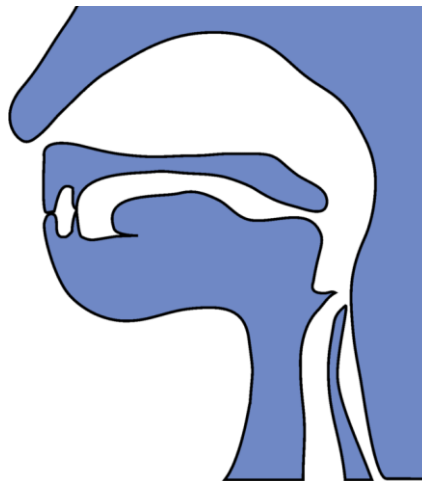
Destructuring of food during oral processing

Jianshe Chen

Laboratory of Food Oral Processing, School of Food Science and Biotechnology, Zhejiang Gongshang University, Hangzhou, China

Structuring and destructuring of food are two most important processes serving for completely different purposes. Food structuring refers to the assembly of food components at particle and molecular levels to create a desirable structure by using functional ingredients and applying novel techniques of processing. Food destructuring is a process associated with the consumption of a food product, starting from the first bit to oral processing and the whole gastro-intestinal digestion process. Proper structuring is essential for a high quality food product, while destructuring enables full appreciation of the sensory pleasure of a food product and the effective release and adsorption of its nutritional components. For optimised structuring and destructuring, proper understanding of food rheology is essential.

This presentation will review rheological aspects of food materials and contributing factors to structure formation and destruction of a food product. Emphasis will be on the destructuring of food materials during oral processing. Highlights and case studies will be given on food breakage, the formation of food bolus, and the impacts on the mouthfeel and flavour release. The presentation aims to give an introductory scientific insights of food structure and the rheological principles on food design and its functional properties.



Rheological properties of artificial boluses of cereal foods enriched with legume proteins to quantify food-saliva interactions

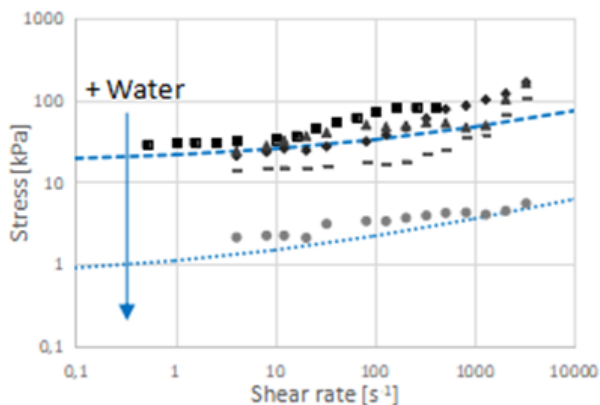
F. Gibouin¹, R. van der Sman², J. Benedito³, G. Della Valle¹

¹ INRAE, UR-1268 Biopolymères Interactions et Assemblages, 44316 Nantes

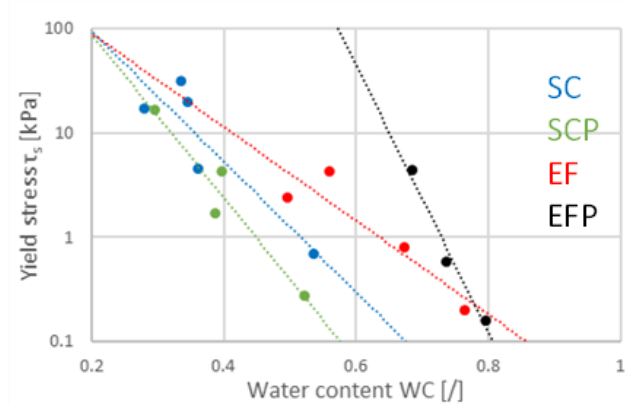
² Agrotechnology and Food Sciences, Wageningen University and Research, 6708 WG Wageningen, The Netherlands

³ Universitat Politècnica de Valencia, Departamento de Tecnología de Alimentos, 46071, Valencia, Spain

During oral processing (FOP), food bolus experiences a large range of shear rates, and also extensional flow. The study of FOP is an essential step in food design, in the case of enrichment of foods by legume proteins, for instance. The aim of this work is to determine the rheological properties of artificial boluses of cereal foods. In this purpose, the properties of artificial food bolus are studied by dynamic oscillatory and capillary rheometries as function of bolus water content, in the usual range of saliva hydration, for four cereal products: sponge cake, extruded flat bread and their counterpart enriched in legume proteins. All boluses followed the same rheological behaviour characterised by (1) solid-like in the linear viscoelastic domain and (2) Herschel-Bulkley model for large shear strain. Hence, four characteristic rheological properties are determined: modulus at viscoelastic plateau, characteristic stress at transition to flow, yield stress and consistency in the flow regime. Water content considerably decreased these properties according to an exponential decay, which allowed determining interactions coefficients ($5 \leq \alpha \leq 30$). These values are of the same order of magnitude as the plasticization coefficient of starch by water, but they were larger for the extruded pea based (EFP, $\alpha \geq 15$), and were lower for the sponge cake (SC, $\alpha \leq 15$). The variations for the different rheological properties are discussed in terms of matter state, envisioning bolus as a suspension of swellable particles, and their values were compared to those encountered for real boluses from same foods. These results open prospects to define a coefficient of interaction of food with saliva.



(a)



(b)

(a) Typical flow curves obtained by capillary rheometry for sponge cake (SC) bolus and (b) variations of yield stress with moisture content for protein enriched SCP, extruded flat bread (EF) and pea flour (EFP).

Ultrasound based mechanical characterization of the tongue-food system during the course of uniaxial compressions

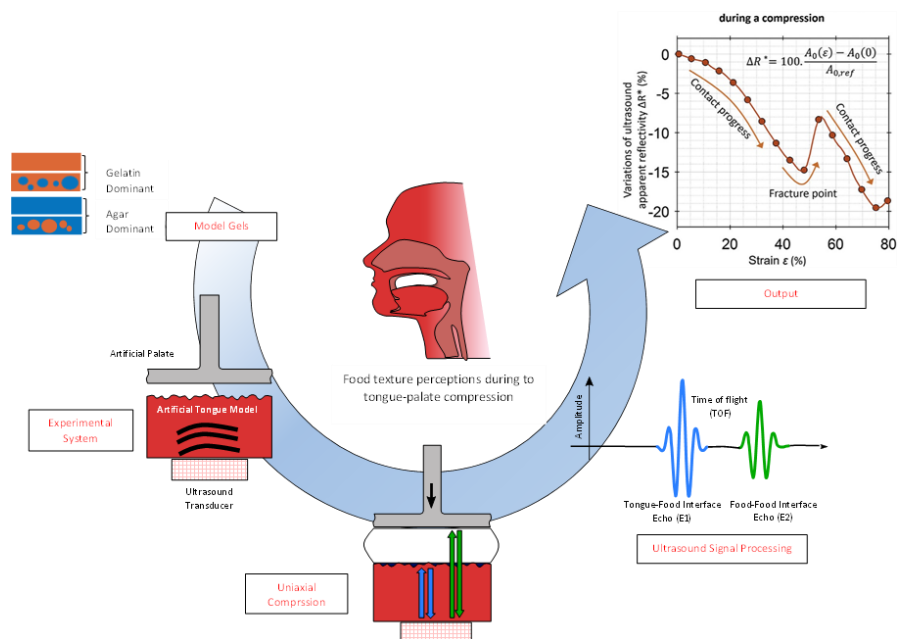
R. Srivastava¹, A. Saint-Eve¹, I. Souchon², V. Mathieu¹

¹ Université Paris-Saclay, INRAE, AgroParisTech, UMR SayFood, 78850, Thiverval-Grignon

² Avignon Université, INRAE, UMR SQPOV, 84000 Avignon

Texture perception is a widely studied topic with respect to food structure and mechanics. However, the role of the interactions between food and oral surfaces in this regard remains sparsely studied, which points towards the need of developing *in-vitro* biomimetic set-ups. The aim of this study was therefore to develop a novel ultrasound method to comprehend the mechanical deformations and the coupling phenomena during the compression of food gels on artificial tongue models.

Artificial tongues were made from poly-vinyl alcohol (PVA), with different rigidities and roughness parameters to mimic realistic physiological conditions. Cylindrical gels (10 mm in height) made from agar and gelatin were used as the model foods. Heterogeneity in the gel structure was introduced both at microscopic level by mixing the two polymers, and at macroscopic level by combining two different gel layers (5 mm in height). An ultrasound transducer was placed underneath the PVA surface to monitor the breakdown of model foods under a controlled uniaxial compression provided by a texture analyzer.



Ultrasound based mechanical characterization of the tongue-food system during the course of uniaxial compressions

The procured results revealed that ultrasonic parameters like time of flight (ToF) and reflection coefficient of tongue-food interface (R^*) exhibited dynamic variations with changes in properties of food (elasticity, wettability, adhesion, water release) and tongue (rigidity and surface roughness). It was evident that R^* reflected the capacity of food to deform and mold the asperities on tongue surface, or to release water. Moreover, in the case of bi-layer gels, ToF analysis confirmed the potential of ultrasound to visualize how a difference of Young's modulus between layers led to heterogeneous strain distributions (prominently for the softer layers). An increase of Young's modulus for one given layer also led to the anticipated fracture of its paired brittle layer. We conclude that these ultrasound methods provide non-invasively interesting information, which could be linked to sensory properties for a better understanding of texture perception.

Impact of micro-aeration on the bulk mechanical properties of chocolates and link with oral processing

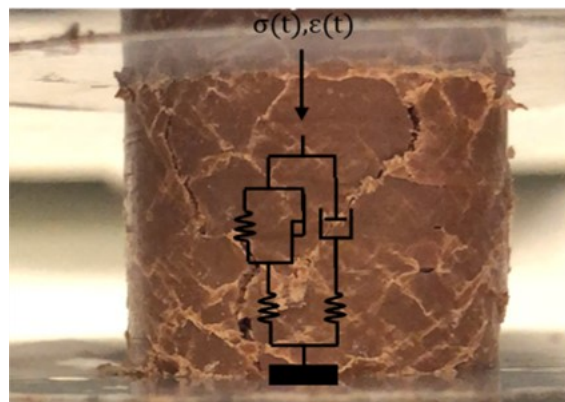
D. Bikos¹, G. Samaras¹, P. Cann¹, M. Masen¹, Y. Hardalupas¹, C. Hartmann², J. Vieira³,
M.N. Charalambides¹

¹ Department of Mechanical Engineering, Imperial College, London,

² Nestlé Research, Lausanne,

³ Nestlé Product Technology Centre, York.

Micro-aeration has been applied in food systems to create a sophisticated sensorial profile which has been found to be widely accepted by the consumers. Micro-aeration produces bubbles of the same scale in size as the rest of the ingredients found in chocolate impacting the microstructure, the bulk material properties and finally texture. This study aims to determine the effect of micro-aeration on the mechanical properties of chocolates such as Young's modulus, yield and fracture stress and calibrating a Finite Element viscoplastic material model aiming to simulate the first bite conditions. Uniaxial compression experiments are performed to determine stress-strain curves for all chocolate samples together with fracture experiments to compute the fracture toughness. *In-vivo* mastication tests were also performed to establish a link between the fracture toughness and fragmentation during the first two chewing cycles. The results showed that aeration creates a brittle product, which fragments quickly during mastication as evidenced by the *in-vivo* tests. The calibrated viscoplastic material model describes the stress-strain behaviour accurately for all types of chocolates. The work provides new insight into the role of bubbles on the bulk behaviour of chocolates and defines the mechanical properties which are important input parameters towards the simulation of the first bite conditions.



Aerated chocolate of 15% porosity during uniaxial compression at the end of the experiment. The schematic diagram of parallel connections of springs and dashpot describes the time dependent behavior of the material

Microstructure and local mechanical properties of composites based on pea flour and its biopolymers

I. Jebalia¹, M. Kristiawan¹, M. N. Charalambides², S. Humphry-Baker³, G. Della Valle¹,
S. Guessasma¹

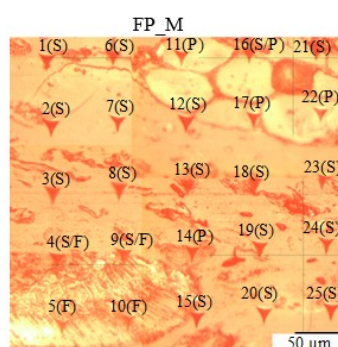
¹ INRAE, UR 1268 Biopolymers Interactions and Assemblies (BIA), 44316 Nantes

² Department of Mechanical Engineering, Imperial College London, London SW7 2AZ, UK

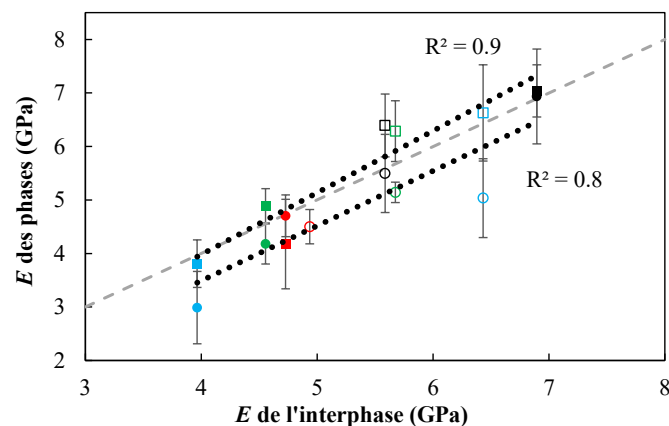
³ Department of Materials, Imperial College London, London, SW7 2BP, UK

Pulses legumes (e.g. pea, lentil, faba bean) can contribute to the development of extruded snack product in complement with cereals. The texture of these foods, considered as solid foams, is governed by their structure at different scales: density, cellular structure and intrinsic properties of cell walls called “intrinsic material”. This dense material presents a composite morphology at the microscopic scale. It consists of an amorphous starch matrix containing dispersed protein aggregates which size depends on the intensity of the thermomechanical treatment (Specific Mechanical Energy, *SME*) and the formulation (protein content). The purpose of this study is to determine the local mechanical properties of solid foams intrinsic material based on pea flour and its biopolymers, and to relate them to their morphological features. Dense starch-protein composites with different protein contents (0.5–88% db) were obtained by extrusion of pea flour and of blends of starch with pea protein isolates. In order to diversify the composites morphologies, the extrusion were performed in a large range of specific mechanical energy (*SME* 100–2000 kJ/kg). The instrumented nanoindenter was used to determine the local Young’s modulus (*E*) in starch and protein phases, as well as their interphase, on composite specimens (two levels of *SME* for each formulation).

The differences between *E* of starch and protein phases and interphase were significant and their values were found to vary in the ranges of 4.2–7, 3–6.9 and 4–6.9 GPa, respectively. The value of starch phase modulus is higher than that of protein phase for most composites. The interphase modulus ranged between that of the protein and the starch phases, and increased with them. The local *E* can be tuned by the protein content and composite morphology, in particular the area of protein fraction. The latter depending on the level of biopolymers transformation (protein aggregation, starch destruction) during extrusion (*SME*). Pea flour composites have particularly interesting mechanical properties thanks to their high fiber content (26% db) with *E* values around 7.5 GPa. These results will feed a Finite Element Modeling (FEM) approach to predict the mechanical behavior of expanded foods, by explicitly taking into account their structures at different scales (real microscopic images), which opens the prospect of designing foods with the desired texture.



(a)



(b)

(a) Optical microscopy images of indentation prints in starch/protein composites and (b) variations of modulus measured in starch (□), protein (○) phases with interphase modulus.

Textural comparative analysis of foodstuffs: Case of smoked salmons

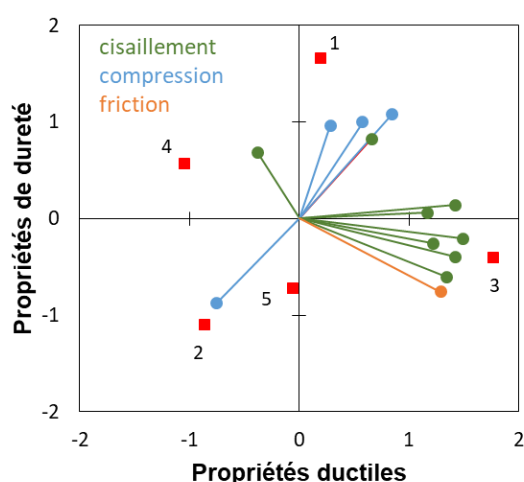
Guillaume Darsy, Martinien Obamba, Matthieu Robert de Saint Vincent, Jérémy Patarin

Rheonova, domaine universitaire, 1270 rue de la piscine, 38400 Saint Martin d'Hères

The assessment of the sensorial perception of foodstuffs is essentially subjective and qualitative, based on blind tasting. A quantitative and objective assessment of the properties associated with this experience lies within the field of application of rheology. The objective of this study is to relate mechanical quantities (rheology and tribology) with the main sensorial characteristics (texture in the mouth, softness, lubricant) of smoked salmon samples.

The study is carried out on five products. Rheological measurements, in shear (strain and frequency sweeps) and in compression (axial frequency sweep, normal force), allow us to get the viscoelastic properties in the linear regime and at the gel point in conditions which simulate mastication. Tribology analysis is performed in parallel to assess the frictional properties of the samples.

These characterisations allow us to establish, through a principal component analysis, a comparative sensorial profile between the products. The main axes are associated with the ductile and hardness properties, respectively. The five samples tested feature distinct properties: 1 is very firm, as opposed to 5; 3 features a pronounced rubbery feeling, as opposed to 4 which is also firmer; 2 offers a weak chewing feedback.



(a)



(b)

(a) Sensorial profile of the five smoked salmons (squares) built from a principal component analysis. (b) Photo: by User Benreis on Wikivoyage shared, CC BY-SA 3.0, <https://commons.wikimedia.org/w/index.php?curid=22715221>.

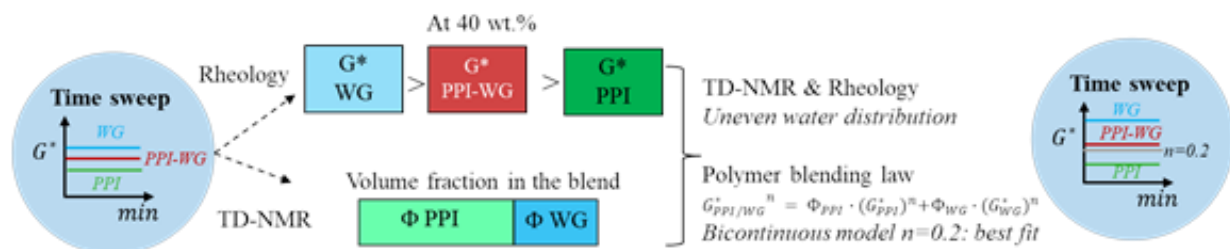
Rheological properties of plant proteins for meat analogues

F.K.G. Schreuders, A.J. van der Goot

Laboratory of Food Process Engineering, Wageningen University, Bornse Weiland 9, 6708 WG Wageningen, the Netherlands

The development of next generation meat analogues is enhanced by in-depth knowledge of rheological properties of dense biopolymer blends. A closed cavity rheometer was employed to assess the properties of concentrated protein materials during a thermal treatment at the large-shear conditions of interest. Proteins from soy, pea and gluten are major ingredients in many current meat analogues. In this presentation, we will demonstrate how information on the internal structure of pea protein-gluten and soy protein-gluten blends can be obtained by using a polymer blending law to explain rheological responses obtained by the closed cavity rheometer. For the polymer blending law, the water distribution over the phase was determined with TD-NMR. Water is preferentially taken up by soy and pea protein having less water for gluten, which effect strongly changes the volume fraction.

The rheological properties of the separate phases as function of their hydration resulted in a higher modulus for gluten and a lower for the pea and soy phase. A further analysis of the rheological properties of the blends and the separate phases as function of their hydration was used to explain the different structuring behavior for pea-gluten blends and soy-gluten blends and the consequences for the process windows in which fibrous materials could achieved with those blends.



Schematic approach to tackle the rheological properties of plant protein blends

Foams and emulsions rheology: from basics to food applications

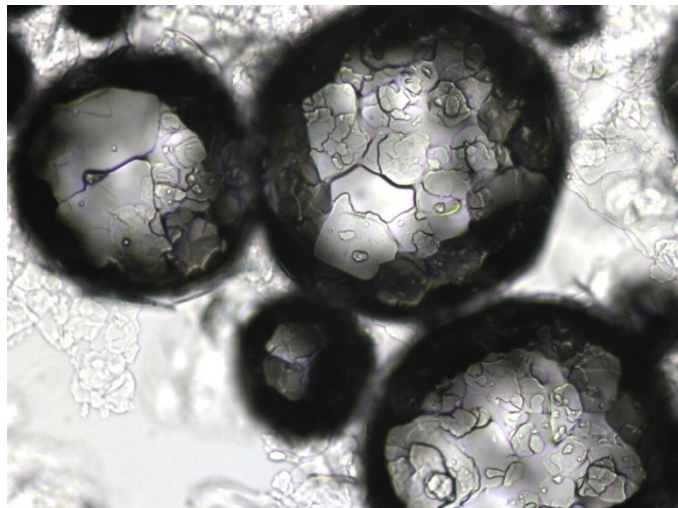
Arnaud Saint-Jalmes

Institut de Physique de Rennes – CNRS – Rennes

When you eat, it is not rare that you encounter foods that have been foamed or emulsified. In fancy restaurants, one may even end up with a “mousse” !

By definition, aqueous foams are dispersions of a gas into a liquid, while emulsions are dispersions of a liquid (usually an oil) into another one (usually water). Once the phases are dispersed and thanks to chemical stabilizers, one can obtain a white viscoelastic material... which turns out to be quite different from the initial ingredients.

Here, I will first recall the basics of the rheology of foams and emulsions : yielding, shear-thinning, roles of the bubble (droplet) sizes, effects of the fraction of gas, water and oil, and impact of aging and slipping. I will then discuss some of the features of food foams and emulsions stabilized by proteins, allowing me to introduce some elements of interfacial rheology. Lastly, I will conclude by presenting recent works on non aqueous foams (“oleofoams”).



Typical image of a « foamulsion » or « oleafoam »

Dynamic rheology for the determination of the specific energy of cohesion between fruit juices suspended solids for a relevant choice of hydrodynamic conditions in crossflow filtration

Camille Demoulin¹, Loyal Dahdouh^{1,2}, Julien Ricci^{1,2}, Michèle Delalande¹, Christelle Wisniewski¹

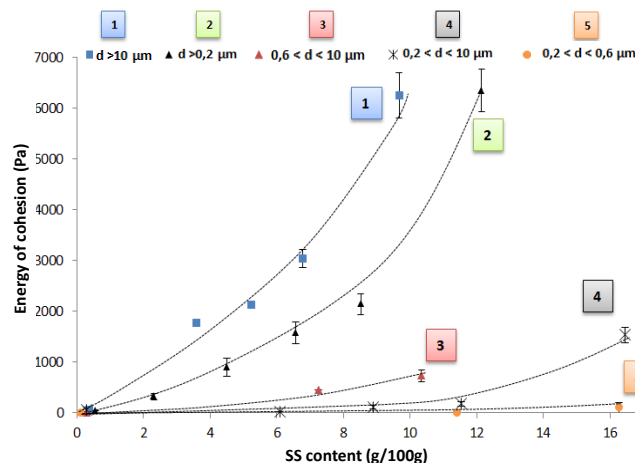
¹ Qualisud, Université de Montpellier, Avignon Université, CIRAD, Institut Agro, IRD, Université de La Réunion, Montpellier

² CIRAD, UMR Qualisud, F-34398 Montpellier

Fruit juices are complex liquids of biological origin, constituted of various particles due to vegetal tissues degradation, with large particles size scale of nanometre (solutes) to micrometre (cells, undamaged vegetal tissues) dispersed in a sugar solution. Microfiltration is successfully applied to their stabilization and clarification or to concentrate their pulpy fraction. Generally, fruit juices microfiltration is carried out under high crossflow velocities in order to limit membrane fouling.

Indeed, in such operating conditions, back-transport forces prevent the deposition of particles on the membrane surface leading to better performances. These specific operating conditions, associated to the juice circulation in the filtration loop at high shear stresses, have also been recognised to modify the characteristics of the suspension to be filtered. Dahdouh et al. (2018) showed that these intense hydrodynamic conditions of juice circulation were likely to induce significant changes concerning the particles size distribution, with a possible particle fractionation. The fractionation of the large particles into smaller supra-colloids and colloids has to be carefully considered as back-transport forces close to the membrane surface could become less efficient and thus allow a potential deposit of the new suspended solids. This fractionation of the particles could consequently modify the physico-chemical characteristics of the deposit, as well as its permeability. The aim of this study was to propose a rheological approach for a better understanding of the interactions between fruit juices suspended solids close to the membrane surface, during crossflow microfiltration, to optimize the filtration performance.

The specific energy of cohesion of suspended solids was obtained from rheological measurements in dynamic mode carried out on orange juice fractions with different suspended solids concentrations and size-classes. Results showed that the specific energy of cohesion increased as the SS content increased, independently of the particles size. However, the solid-like behavior of the juice was enhanced by the presence of large particles. The results obtained show that particles network strength and the viscoelastic behavior of juice result of complex interactions between all juice particles. Even if it was demonstrated that these complex interactions depend on the size of the particles, they might depend also on the physicochemical nature of these latter. The knowledge, for the studied fruit juices, of the evolution of their viscoelastic behavior as function of the SS content might be useful to control and optimize the different operations of their transformation chain.



Evaluation of the impact of the particle size on the structuring of a deposit

Emulsions solely stabilized by soybean fibers: phase diagram and rheological studies

Noémie Ourvois-Maloisel¹, Véronique Vié¹, Arnaud Saint-Jalmes¹, Fabienne Gauffre², Ludovic Paquin³, Claire Surel⁴, Théo Efstathiou⁴

¹ Univ Rennes, CNRS, IPR (Institut de Physique de Rennes) - UMR 6251, 35000 Rennes

² Univ Rennes, CNRS, 2CBioMIF -ScanMAT-UMS2001, 35000 Rennes

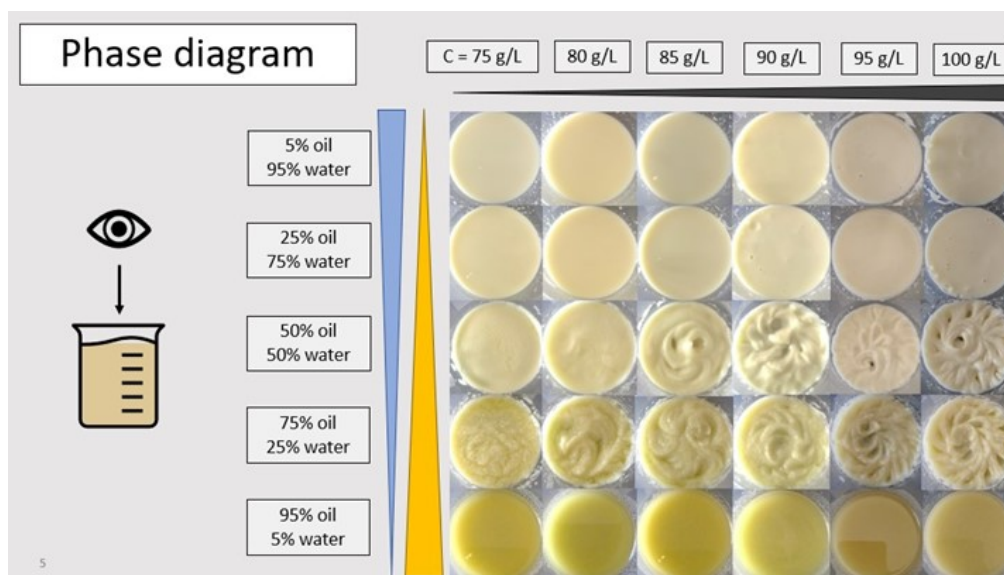
³ Univ Rennes, CNRS, ISCR (Institut des Sciences Chimiques de Rennes) - UMR 6226, 35000 Rennes.

⁴ Triballat Noyal – Centre Recherche et Innovation Nutrinov, 35000 Rennes

Along the industrial treatments of soybean, various co-products are obtained. One of them – named “okara” – contains a large amount of fibers, together with some proteins and lipids. Here we report our results on the ability of such a rich-fiber product to stabilize oil-in-water emulsions, without adding any other emulsifying ingredients.

We performed both experiments at various fiber concentrations in oil, and over the whole range of fractions of water and oil. We have then built a phase diagram based on the macroscopic observations of these emulsions. It turned out that the highest emulsion stability and homogeneity were obtained for equal volumes of oil and water (50/50 emulsion). In complement, at the microscopic scale, we performed microscopy and surface tension measurements at the oil/water interface.

Oscillatory experiments on these 50/50 emulsions first revealed that such emulsions already developed a yielding behavior, which is unusual when compared to surfactant or protein emulsions, and evidencing the major role of the fibers on the mechanical properties. Moreover, we monitored a drastic effect of the fiber concentration: the elastic and viscous moduli span over almost 3 orders of magnitude, as the concentration is only varied by 3. In contrast, the experiments showed that the yield strain varies by less than a factor 2 over that same variation of concentration. Such results illustrate how much one can tune the stability and rheology of a fiber-stabilized emulsion by setting the liquid fractions and fiber concentrations.



Phase diagram of emulsion for various levels of oil/water and soy fiber concentration

Rheological behavior of protein-stabilized fluid interfaces: From sub-second to hours

Emma B.A. Hinderink^{1,2}, Jolet de Ruiter², Karin Schroën², Leonard M. C. Sagis³, Claire C. Berton-Carabin^{2,4}

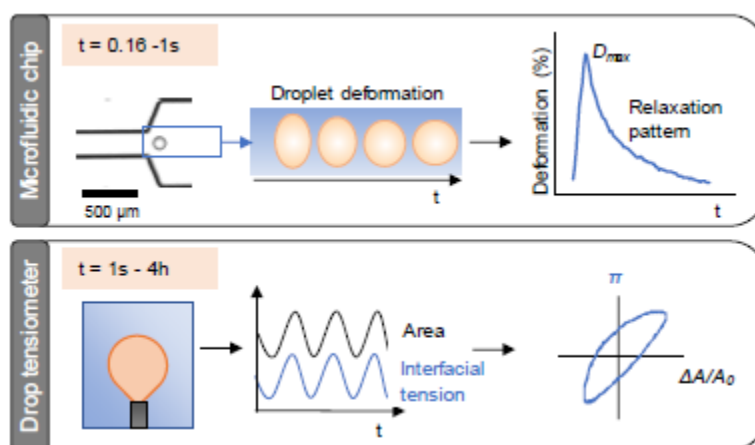
¹ TiFN, P.O. Box 557, 6700 AN, Wageningen, the Netherlands

² Laboratory of Food Process Engineering, Bornse Weiland 9, 6708 WG Wageningen, the Netherlands

³ Laboratory of Physics and Physical Chemistry of Foods, Bornse Weiland 9, 6708 WG Wageningen, the Netherlands

⁴ INRAE, UR 1268 Biopolymères, Interactions & Assemblages (BIA), 44316, Nantes, France

The structure and rheological properties of fluid interfaces have been characterized at many different time- and length scales. For instance, second-to-hour time scales can be approached using a Langmuir trough or a drop tensiometer. Proteins, the focus of the present study, show complex interfacial behavior due to post-adsorption rearrangements and interactions taking place at the interface, resulting in the formation of a viscoelastic interfacial layer. Although the aforementioned measurements can be insightful for long-term stability of interfaces and related colloidal systems, such as emulsions, the investigated conditions are very different from those occurring during droplet formation and stabilization in large scale emulsification processes. The latter involve short time scales and convective mass transport of proteins towards the interface. To understand the phenomena occurring during emulsification, effects that take place at very small scale and extremely short time scales need to be investigated, for which microfluidic techniques are particularly suited.



Overview of the interfacial characterization techniques. Within the microfluidic chip, droplets are deformed after leaving a constriction and the deformation is measured over time. The maximum deformation (D_{max}) is a measure of the interfacial stiffness and the relaxation pattern of the viscous and elastic contributions due to in-plane protein interactions. In the drop tensiometer, large oscillatory deformations are applied and the resulting interfacial tension response is converted into Lissajous plots. These plots provide insights in the non-linear behaviour of the interfacial layer.

In the current study, we used two protein sources: whey proteins, which are known to form interconnected, strong interfacial films within hours-days, and pea proteins as a typical plant protein alternative, which contains native and process-induced supramolecular structures (multimers, aggregates). We tested both proteins individually, and also mixtures of the two, in tailor-made microfluidic chips that allow for probing the rheological properties of protein films covering emulsion droplets, at short time scales ranging from 0.16 s to 1 s. In parallel, we used drop tensiometry to characterize the long-term interfacial phenomena and represented the data as Lissajous plots to highlight the interface's non-linear rheological properties. We show that interfacial network formation at the sub-second scale results in an increase of the viscous contribution, which constitutes the start of the interconnected film, typical for protein-stabilized interfaces, as measured at longer time scales in the drop tensiometer.

Multi-scale approach to study crystallization behavior of cocoa butter-copra oil blends

Julie Bloquet Maurras^{1,2}, Véronique Schmitt²

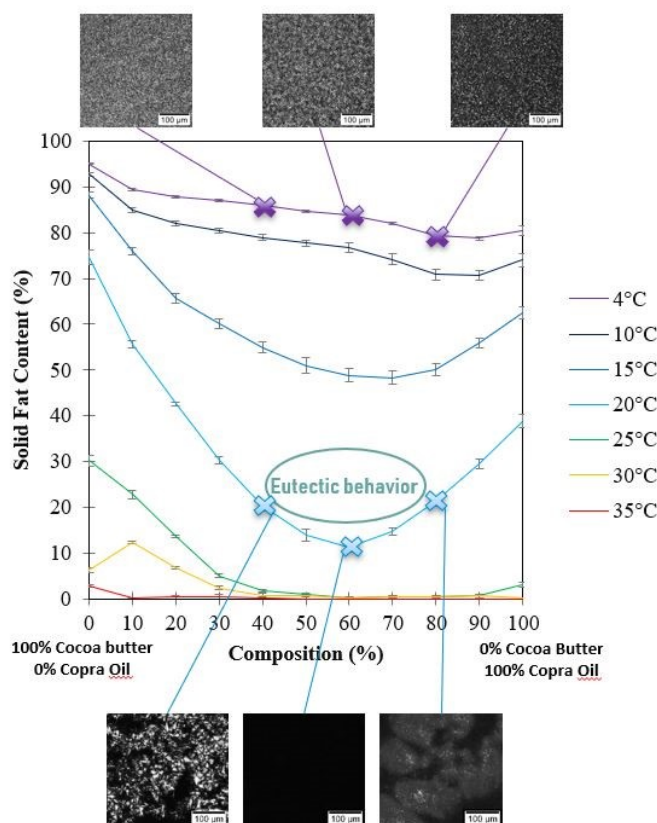
¹ SOREDAB, 78125 La Boissière-École

² CRPP, Université de Bordeaux, 33600 Pessac

Nowadays, consumers are turning towards vegetarian and vegan foods as part of a more sustainable approach than animal-based products. Fat-containing food products are important components in our daily diet and thus, food industries are keen to find alternative fats from plant sources. The role that fats play in material functionality, flavor perception, texture and health characteristics are in large part due to their physical properties. Fat blending is often used to design oils and fats for specific applications and is also the most practical and affordable method to achieve specific properties or nutritional profile.

Three fats were studied in a ternary experimental design: cocoa butter, copra oil and sunflower oil, with a focus on binary blends of cocoa butter and copra oil. Indeed, cocoa butter and copra oil are known for their incompatibility when blended together. The objective was to understand the impact of incompatibility on the structure of fat blends using a multiscale approach from the microscale to the macroscale.

Solid fat content (SFC) profiles and isosolid diagrams of CB/CO mixtures showed eutectic formation, indicating a softening of cocoa butter by copra oil addition. When CB was blended with more than 50% of CO, a depression in SFC corresponding to a lower melting point of the mixture was observed. Dilution interactions were observed at low temperature whereas eutectic was evident from 15°C to 25°C with the most pronounced eutectics occurring at the 60% copra oil addition at 20°C. Crystal morphology and network's structure of blends were different as a function of the fat composition. Considering the textural properties, blends with high copra oil contents showed lower hardness in accordance with lower SFC.



Phase diagram of cocoa butter-copra oil blends

The measure of rheology highlights the role of agricultural practices on the control of textural quality on industrial tomato purees

Miarka Sinkora¹, Alexandre Leca¹, Anne-Laure Fanciullino², Nadia Bertin², David Page¹

¹ INRAE, Avignon Université, UMR SQPOV, 84000 Avignon

² INRAE, Avignon Université, Unité Plantes et Systèmes de culture Horticoles, 84000 Avignon

Tomato purees are concentrated solutions composed of particles in suspension in a serum. Texture is one of the main quality criteria in food products. It results from complex interactions between the particles and the serum in which the latter are in suspension. Particles issued from fruit tissue destructuration may vary in number, size and shape, depending on the structures remaining or reorganizing during the process. The density and viscosity of the serum may vary depending on its composition in soluble metabolites (mainly sugars, organic acids and soluble pectins) and their concentration. All these elements are influenced by the variety, cultural practice or transformation process. The objective is, in the first time, to identify factors influencing the most the texture of laboratory scale purees (2 process – hot break and cold break – known to affect texture) from fruits cultivated under controlled conditions (4 varieties, 2 irrigation levels, 2 nitrogen fertilization levels). In a second time, we focused on the comprehension of parameters being the source of viscosity modifications caused by the most influent factors. To this end, we produced purees at a pilot scale to study their rheological properties.

Laboratory scale purees presented apparent viscosity at a shear rate of 50 s^{-1} from 100 to 700 mPa.s. The tomato variety explains between 36 and 51% of the viscosity variability, and the factor process between 30 and 43%, depending on the year. Purees produced with variety "H1311" had the highest viscosity. The hot break process conducted to more viscous purees than cold break. Purees in 2019 were twice more viscous than in 2020, which may be explained by a higher dry matter content in 2019. For purees processed at the pilot scale, the damping factor ranged between 0.26 and 0.31, which is characteristic of viscoelastic solids. The consistency coefficient and flow behaviour index of the power law model of the flow curve were higher for H1311 compared to Terradou, and increased with the hot break process. The yield point, calculated with oscillatory test, was also higher for H1311 variety, and hot break process, while the loss factor was only affected by the process. The particle size measured by laser granulometry did not follow the theory that purees with higher viscosity contain bigger particles, the diameter ($D_{4,3}$) of the most represented particles being higher for Terradou variety. The particle size distribution is bimodal with small particles around $60 \mu\text{m}$ and bigger between 300 and $400 \mu\text{m}$. This bimodal repartition is affected by the transformation process.

This study shows that the variety and process are the main factors affecting the puree viscosity. Both factors affect the consistency coefficient and yield point, while the flow behaviour index was modified by the variety, and the loss factor by the process. The choices of agricultural practices (pre-harvest) and technical itinerary of raw material (post-harvest) condition the rheology of tomato purees, without affecting exactly the same parameters. This study highlights criteria that could be strategic to monitor in order to optimize the quality control by agricultural practices.

Prix Maurice Couette 2020

Philippe Cassagnau



Philippe Cassagnau est le récipiendaire 2020 du prix Maurice Couette. Nul besoin d'expliquer ici pourquoi ce prix ne lui sera remis qu'en 2021, d'autant qu'il n'y est pour rien. Nous espérons fermement pouvoir le lui remettre lors du 55^{ème} Colloque du GFR à Bordeaux.

Ancien élève de l'Ecole communale de Castetpugon (64330) vers la fin des années soixante, Philippe Cassagnau a effectué sa thèse de doctorat à l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, sous la direction de Jean-Pierre Montfort sur « La dynamique moléculaire, les mécanismes de renouvellement de tube et la rhéologie des polymères polydispersés », thèse soutenue en 1988.

Il est ensuite entré au CNRS, au sein du Laboratoire des Matériaux Organiques, avant de devenir, à la fin du siècle dernier, Professeur à l'Université Claude Bernard Lyon 1, au sein de l'école d'ingénieurs devenue Polytech'Lyon, et au Laboratoire Ingénierie des Matériaux Polymères, dont il prend la direction en 2011, fonction qu'il occupe jusqu'à 2017. Ses activités scientifiques s'y sont déclinées suivant des aspects aussi divers que la rhéologie des polymères et des suspensions, le mélange des polymères et l'extrusion réactive, la transformation de systèmes hautement chargés et de nanocomposites, la formulation et le recyclage des polymères.

Les nombreux projets de recherches, nationaux et internationaux, qu'il a coordonnés ou auxquels il a participé attestent de son rayonnement et de son investissement indéniable au service de la rhéologie; il a été auteur ou co-auteur de plus de 300 publications, dont la grande majorité font une part belle à la rhéologie. Il a notamment été lauréat du prix Morand Lambla décerné par la Polymer Processing Society en 2006. Il a coordonné des ouvrages collectifs dont « *Extrusion réactive. Des aspects fondamentaux aux développements industriels* », paru chez Lavoisier-Hermès en 2019 et récemment lauréat du prix Roberval.

En outre, il a tissé de nombreux partenariats industriels, comme le montrent ses fonctions au sein du Pôle de Recherche « Lyon Polymer Science & Engineering » (LPSE), dont il assure la direction depuis 2015. Ce pôle rassemble le laboratoire de recherche Ingénierie des Matériaux Polymères (IMP), le laboratoire de Chimie, Catalyse, Polymères et Procédés (C2P2) et celui des Polymères et Matériaux Avancés (LPMA, Solvay/CNRS), ainsi que sept groupes industriels : Arkema, Bluestar Silicones, Hutchinson, Nexans, Solvay, Toray et Total. C'est donc tout naturellement qu'il assume également les fonctions de Vice-Président délégué à l'ingénierie et l'innovation à l'Université Claude Bernard Lyon 1.

Membre actif du conseil du Groupe Français de Rhéologie, il en a été président pendant plus de trois ans, au cours desquels il a notamment initié la tenue de « Workshops » de deux demi-journées pour favoriser la participation d'industriels et il a stimulé le développement de l'encyclopédie électronique.

Volontiers visionnaire, il n'hésite pas à situer l'âge d'or de la rhéologie des polymères au siècle dernier, tout en soulignant les larges perspectives ouvertes par son application à des systèmes beaucoup plus complexes, intégrant de nouvelles fonctions, et prenant en compte les aspects environnementaux ainsi que l'économie circulaire.

Au nom du Groupe Français de Rhéologie et de notre communauté, nous lui adressons toutes nos félicitations pour cette distinction qui reconnaît une activité riche et une personnalité rayonnante.

Guy Della Valle
Président du GFR

De l'ancien monde des plastiques au nouveau monde des matériaux polymères : une rhéologie intemporelle

P. Cassagnau

*Université Lyon 1, Ingénierie des Matériaux Polymères, CNRS, UMR5223,
15 Boulevard Latarjet, 69622 Villeurbanne*

Résumé : Cet article n'est absolument pas scientifique, pas d'expériences, pas d'équations, quelques figures certes, mais qui n'auraient pu être publiées dans un journal indexé. Voilà la liberté de notre revue *Rhéologie*. Y a-t-il eu un âge d'or de la rhéologie des plastiques ? J'ai écrit plastique, quel malheureux je suis, je pollue les sols, les rivières et j'ai créé un 7^{ème} continent. Mais non, mon laboratoire s'appelle Ingénierie des Matériaux Polymères. Ouf, pas le mot plastique, ni même celui de chimie, je sors de ce cauchemar où je me voyais englué et étouffé par tous ces détritiques, dont certains avaient de belles couleurs, je dois l'avouer. Mais pour autant vais-je m'endormir serein ce soir ? Alors, le simple rhéologue que je suis ne réfléchit-il qu'à ses expériences, ses contrats, ses projets ANR et européens ou à ses ambitions scientifico-politiques à l'Université ? En d'autres termes, le rhéologue a-t-il une conscience, voire même une pensée ? Vous le saurez en lisant cet article intégralement !

1. Une extrudeuse dans la Creuse

Le récipiendaire du prix Maurice Couette a le privilège de publier un article dans la revue « *Rhéologie* » sans être soumis au processus de relecture par ses pairs. Ce privilège accorde toute liberté à l'auteur sur le choix du sujet qu'il souhaite porter à la connaissance de sa communauté. En fait, là est la question : que vais-je bien pouvoir raconter d'intéressant dans cet article ? Après toute une carrière dans le domaine de la rhéologie, de la formulation des polymères, et à quelques années de la retraite, les sujets ne manquent pas, mais ils ne sont *a fortiori* plus originaux ou du moins ont-ils déjà été publiés. Une revue aurait pu s'imposer, mais cela demande un grand investissement si l'on souhaite qu'elle ne porte pas quasi-exclusivement sur ses propres travaux. Alors ? En vacances pendant quelques jours dans la Creuse, lors de cet été de confinement, il fallait bien occuper ses journées dans cette campagne d'un calme forcément rustique : quelques lacs, des élevages de bovins, des villages avec une église, et bien-sûr un monument aux morts. Ces campagnes étaient grandement peuplées au début du siècle dernier au regard du nombre de noms gravés sur ces monuments. Je m'éloigne trop de la rhéologie et de la mise en œuvre, mais me voilà visitant le musée de la tuilerie de Pouligny : à ma grande surprise, je vis une extrudeuse dont j'ai bien-sûr pris une photo (Fig. 1). Cette extrudeuse, installée en 1920 dans cet atelier (et oui, c'est une extrudeuse monovis dont le fonctionnement est assuré par une courroie entraînée par un moteur Diesel), constitua une réelle rupture technologique pour la préparation de briques avant leur cuisson. Un réel émerveillement et surtout un grand étonnement : comment pouvait-on mettre en



Figure 1. Extrudeuse pour la mise en œuvre et en forme de briques d'argile. Tuilerie de Pouligny (23220, Chéniers, Creuse).

œuvre et en forme des suspensions d'argile très fortement concentrées 70 ans avant les travaux pionniers de Philippe Coussot sur les fluides à contrainte seuil et de Jean-François Agassant sur la modélisation des écoulements en extrudeuse ? Après tout, c'est Archimède qui inventa la vis portant son nom et dont la première utilité fut de transporter de l'eau, mais cela laisse quand même interrogatif sur la science et la technologie ! Toujours est-il que cette extrudeuse me révéla le sujet que je vais développer dans la suite de cet article : de l'ancien monde des plastiques au nouveau monde des matériaux polymères.

2. Du chant du styrène aux modèles rhéologiques

*O temps, suspends ton bol, ô matière plastique !
D'où viens-tu ? Qui es-tu ? et qu'est-ce qui explique
Tes rares qualités ? De quoi es-tu donc fait ?
Quelle est son origine ? En partant de l'objet
Retrouvons ses aïeux ! Qu'à l'envers se déroule
son histoire exemplaire.*

Ces premières lignes du poème de Raymond Queneau (1958, *Le chant du Styrène*, Alain Resnais, <https://www.dailymotion.com/video/x5841br>) illustre bien l'émerveillement suscité par ces nouvelles matières plastiques dans les années d'après-guerre. Toutefois, à bien y regarder, ce court métrage, financé par un grand groupe industriel disparu depuis, est un des plus déprimants qui soit sur les matières plastiques, bien avant les émissions d'Elise Lucet, sur la pollution engendrée par les plastiques. Mais dans ces années-là, le progrès, c'était le gisement de gaz de Lacq et la généralisation de la vaccination de tous les élèves des écoles primaires. A la fin de ces années 50, et 40 ans après l'article de Staudinger (1920) portant sur la polymérisation, les travaux de Ziegler et Natta (Prix Nobel de chimie 1963) vont ouvrir la voie à la production industrielle des plastiques dans ces années de forte croissance économique.

Si l'on souhaite parler de l'objet, il faut d'abord le créer. La fabrication d'un bol en plastique, comme d'une brique d'argile d'ailleurs, nécessite des procédés de mise en œuvre et de mise en forme, dont la fabrication additive pourrait être le plus récent. Dans tous ces procédés, il est essentiel de connaître la rhéologie, voire d'une façon plus générale la viscoélasticité, de ces fluides, de nature souvent complexe. Sans aucun doute, les travaux de Ferry et de Carreau ont été pionniers dans ce domaine et font toujours référence, même si on les réduit malheureusement trop souvent à la loi WLF et à la loi de Carreau (Carreau-Yasuda, plus précisément). Ces travaux sont anciens, Ferry publia la première version de son ouvrage « *Viscoelastic Properties of Polymers* » en 1961 et Carreau son article (*Rheological equations from molecular network theories*) en 1972. Le concept moléculaire, basé sur les théories de Rouse et Lodge, est déjà présent dans ces travaux, mais il faudra attendre le concept de reptation introduit par De Gennes (1971, Prix Nobel de Physique 1991) sur la diffusion moléculaire des chaînes polymères, pour définitivement conceptualiser la viscoélasticité linéaire et non-linéaire des polymères à l'état fondu (Doi-Edwards, 1986).

En ce qui concerne les procédés de mise en œuvre et de mise en forme, la rhéologie des polymères s'est

bien souvent cantonnée à des équations simples pour prendre en compte les écoulements des polymères fondus. En fait, une question s'est posée, en fin de siècle dernier, quant aux fondements des équations constitutives pour prédire le comportement rhéologique de ces fluides, afin de les intégrer dans les codes de calcul de simulation par éléments finis. Faut-il partir de modèles phénoménologiques ou de modèles de dynamique moléculaire ou, exprimé différemment, peut-on se contenter du modèle de Carreau-Yasuda, bien que fondé théoriquement, ou est-il préférable d'utiliser les modèles de double reptation ? Je relis, un brin amusé, une phrase de mon introduction de thèse (1988) : *Dans ce mémoire, nous nous sommes proposés d'intégrer dans une approche des produits à larges distributions des masses molaires, les concepts de dynamique moléculaire permettant de mieux fonder les modèles rhéologiques*. Pouvais-je écrire seul une telle phrase, digne d'un projet ANR, vingt ans avant la création de cette agence ? Il est plus probable qu'elle m'ait été soufflée par mon directeur de thèse (J.P. Montfort).

Dans la pratique, la vision des modèles est beaucoup plus pragmatique. En effet, une matière plastique n'est pas seulement un polymère, mais une formulation généralement complexe, qui peut comporter plusieurs additifs de natures très différentes (charges et pigments, stabilisants thermiques, plastifiants et lubrifiants, autres polymères, etc.). N'est-il pas alors préférable de disposer d'un seul modèle simple, prenant en compte cette complexité dans sa globalité, en se basant sur une mesure expérimentale, plutôt que sur un modèle tentant d'intégrer conceptuellement l'ensemble des contributions de chaque constituant ? Ces deux points de vue ne sont absolument pas antagonistes, ils sont plutôt complémentaires à l'instar de l'approche pragmatique pratiquée dans les pays anglo-saxons. En France, on a tendance à les opposer bien que cette différence d'appréciation tende à disparaître, comme illustré dans le schéma de la Figure 2, relatant un fait divers : une question très pertinente, ou plutôt provocante, de la part d'une directrice adjointe de l'Institut de chimie du CNRS, regardant cette machine bizarre peinte en orange.

Pour autant, il ne faut pas sacrifier une recherche conceptuelle ; les réelles ruptures dans la formulation des polymères ont été obtenues à partir d'approches fondamentales et pas uniquement phénoménologiques. Les deux articles (*Viscoélasticité des polymères fondus*, 1999, et *Viscoélasticité non-linéaire des polymères fondus*, 2000) de Carrot et Guillet, publiés dans les *Techniques de l'Ingénieur*, ainsi que l'ouvrage d'Agassant et al. (*La mise en forme des matières plastiques*, 1986) sont la parfaite illustration de ces

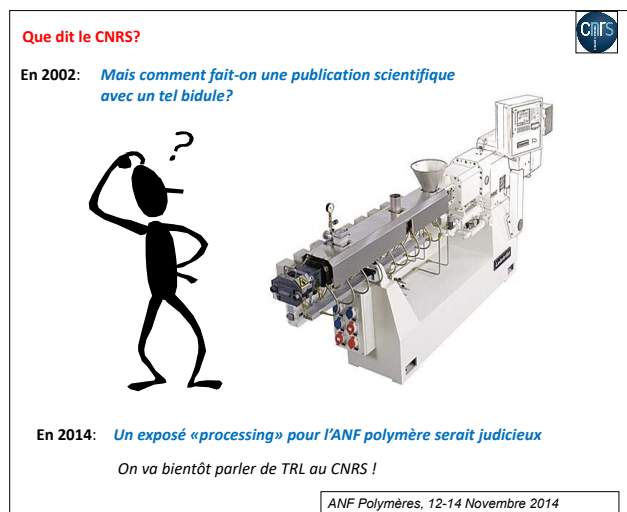


Figure 2. Planche extraite de la présentation : Mise en forme des matériaux polymères, P. Cassagnau, Journées d'actions nationales de formation (ANF) polymère. Le Mans, Novembre 2014.

propos, puisqu'ils démontrent que ces deux approches s'enrichissent mutuellement pour répondre au défi de la détermination de lois constitutives pertinentes.

Et si toute cette conception de la physique et de la rhéologie des polymères fondus était empreinte de nostalgie et déjà dépassée par les méthodes de l'intelligence artificielle ? De l'avis des industriels, l'industrie 4.0 a besoin d'un changement de paradigme dans la description des formulations et des procédés pour leur mise en œuvre et/ou en forme. En effet, le choix des données à recueillir, celles qui décrivent par exemple l'état rhéologique de la formulation dans le procédé d'élaboration, nécessite une expertise forte et mature compte tenu de la grande complexité de ces formulations. En d'autres termes, les données ne sont pas seulement des données au sens de bits, car, grâce à leur traitement par un chercheur, ces données deviennent des informations pour finalement établir des connaissances scientifiques. La simulation peut-elle procéder directement à partir des données en contournant la nécessité d'établir un modèle constitutif au sens traditionnel du terme ? A priori oui, mais les équations de conservation sont, bien sûr, maintenues, tandis que l'effort pour établir les expressions mathématiques des équations constitutives (trop) complexes est allégé. En d'autres termes, les méthodes de l'intelligence artificielle contribuent à l'évolution darwinienne du développement et de la mise en forme de nouveaux matériaux polymères. Nous ne sommes qu'au tout début de cette nouvelle ère, absolument numérique et, comme le dit F. Chinesta : c'est « iénial » !

3. L'âge d'or de la rhéologie des plastiques / polymères

Y a-t-il eu un âge d'or de la rhéologie des polymères en France ? Assurément oui, dans les années 1980-2010, les 30 glorieuses de la rhéologie « made in France » des polymères. Le Groupe Français de Rhéologie (GFR) a été fondé en 1964, alors que le Groupe Français des Polymères (GFP) l'a seulement été en 1970, mais la rhéologie des polymères était alors totalement anecdotique dans ces deux sociétés savantes. La rhéologie des polymères s'est développée avec la mise en forme des matières plastiques. Pourquoi, par exemple, un LDPE est-il plus adapté qu'un HDPE pour fabriquer des films, nos fameux sacs en plastique, par bi-étirage ? Également, comment contrôler les phénomènes de gonflement ainsi que les instabilités d'écoulement en sortie de filière ? Les outils conceptuels de modélisation et de simulation ont été très vite indispensables pour la maîtrise des procédés de mise en forme, non seulement d'un point technologique pour le dimensionnement des outils, mais également en termes de formulation de ces polymères, la formulation au sens large incluant les architectures macromoléculaires. Les réelles avancées conceptuelles ont eu lieu dans les années 1980, en prenant en compte la dynamique moléculaire des chaînes polymères, c'est-à-dire en partant du modèle de reptation intégrant ses différentes évolutions, allant jusqu'à la double reptation. Dans ces mêmes années, les méthodes numériques pour le calcul scientifique (éléments finis par exemple) se sont généralisées à partir du développement des outils informatiques. La création du GDR « Rhéologie pour la Transformation des Matières Plastiques » (1987-1995) par Jean-François Agassant et Jean-Michel Piau a permis à cette communauté de rhéologues français d'échanger et de rapprocher leurs points de vue entre une approche mécanistique et une vision moléculaire des écoulements. Un réel succès qui a sûrement permis aux rhéologues des polymères fondus de devenir des acteurs majeurs au sein du Groupe Français de Rhéologie. Cette évolution a coïncidé bien entendu avec l'extraordinaire développement des rhéomètres, la balance de Képes étant définitivement rangée dans les placards !

Dans la fin des années 1990, ces différents outils et méthodes rhéologiques étaient matures et ont donc évolué vers d'autres horizons, comme par exemple la prédiction de la distribution des masses molaires de polymères thermoplastiques à partir de l'analyse des courbes de viscoélasticité linéaire (méthodes de rhéologie inverse). Ces outils sont même à disposition dans les logiciels des rhéomètres, au même titre que

l'établissement d'une courbe maîtresse à partir du principe de superposition temps/température ou la détermination du spectre des temps de relaxation. La détermination du point de gel pour les systèmes thermodurcissables a également fait l'objet de nombreuses études pour aboutir au critère de Winter et Chambon (1986). Le modèle de Palierne (1991) a également connu un grand succès pour décrire le comportement viscoélastique des mélanges de polymères immiscibles. La rhéologie des polymères fondus a connu un nouvel engouement avec les nanocomposites, mais elle n'est souvent utilisée que comme révélateur d'un comportement viscoélastique, vaguement associé à des interactions charges /charges, charges/polymères, ou plus subtilement à une dynamique locale des chaînes polymères. Il est amusant même de regarder la viscoélasticité décrite dans l'ensemble des études portant sur les vitrimères dont tout le monde parle à l'heure actuelle : on en reste à un comportement de Maxwell avec un seul temps de relaxation. On est revenu à Ferry en tout début des années 1950 !

Pour en revenir au GDR, il a été fondateur pour notre communauté et même visionnaire dans ses ambitions mais pas dans son titre, comme expliqué par la suite.

4. Des matières plastiques aux matériaux polymères

De nos jours, il est préférable d'éviter d'utiliser le mot plastique afin de ne pas s'attirer les foudres du grand public, les matières plastiques étant identifiées comme un des fléaux environnementaux de ce début du XXI^{ème} siècle. Il est donc préférable pour nous, scientifiques, d'utiliser le mot « polymère » qui reste encore noble, ou du moins acceptable par nos concitoyens. Il était fréquent, dans les années antérieures, d'utiliser communément le mot plastique pour désigner les polymères, car dans la plupart des cas, il désignait essentiellement les thermoplastiques. Par exemple, les auteurs ont modifié le titre de leurs ouvrages comme indiqué dans la Figure 3. En fait, l'évolution du titre de cet admirable ouvrage de référence sur la mise en forme des polymères, relève plutôt d'une évolution dans une approche plus conceptuelle de la mise en forme des matières plastiques que d'une nécessité de répondre à des exigences sociétales acceptables. De même, le pôle de compétitivité Plastipolis s'est rebaptisé Polymeris après avoir fusionné avec le pôle Elastopole. Pour le grand public les plastiques polluent les océans mais les polymères qu'est-ce précisément ? C'est peut-être utile au développement de nos sociétés, voire pour l'amélioration de notre environnement ! Pour nous en convaincre questionnons Internet, en recherchant des



Figure 3. Le livre de référence dans « la mise en forme des matières plastiques » (1996), dont la quatrième édition (2014) s'appelle « Mise en forme des polymères ».

images à l'aide de Google en tapant simplement les mots « plastiques » et « polymères ». Le résultat de cette recherche est assez édifiant, comme illustré sur la Figure 4 : « plastiques » est effectivement identifié à un tas de déchets de bouteilles de différentes origines, que l'on imagine bien flotter à la surface de l'eau, alors que « polymères » est associé à une vision plus scientifique.



(a)

Sigle	Structure moléculaire	Désignation courante
PE		polyéthylène
PP		polypropène
PVC		poly(chlorure de vinyle)
PS		polystyrène
PET		poly(bisphthalate d'éthylène)
PA-6		poly(ε-caprolactone)

(b)

Figure 4. Recherche d'images sur Google à partir des mots (a) « plastiques » et (b) « polymères »

Devons-nous pour autant nous cacher derrière le mot « polymères » et renier le mot « plastiques » ? Les polymères représentent un domaine infiniment plus large que les plastiques, puisqu'ils recouvrent également une bonne partie du règne végétal et du règne animal (la cellulose, l'amidon, les protéines, l'insuline, l'ADN...). On peut « vouer les plastiques aux gémonies », mais il est délicat de faire de même pour les polymères. Les polymères, ou plutôt les matériaux polymères, constituent de fait un ensemble de macromolécules plus riche en termes de formulations, de propriétés fonctionnelles et donc d'applications. En d'autres termes, les plastiques concernent les bouteilles, le flaconnage, les tubes, les sacs, etc... et bien sûr le bol en polystyrène ; en fait, il s'agit des plastiques souvent à usage unique, alors que les matériaux polymères sont utilisés pour leurs fonctions a priori plus nobles, comme par exemple films séparateurs dans les batteries, composites, membranes sélectives, implants pour le corps humain, etc..., donc des applications pour la santé, l'alimentation, les loisirs et l'énergie. On parle alors de matériaux polymères, c'est effectivement plus noble, du moins plus acceptable par la société, mais les problèmes de mise en forme et de cycle de vie de ces matériaux sont rigoureusement les mêmes. Y a-t-il alors une hiérarchie dans les polymères, ou plus simplement des mauvais et des bons polymères ? Le mauvais polymère (le plastique) nuit à l'environnement, c'est évident, le bon polymère nuit également mais c'est un bon polymère ! Les matériaux polymères constituant une pale d'éolienne ou intervenant dans la constitution d'une cellule photovoltaïque sont de bons polymères, quand ces systèmes fonctionnent pour nous alimenter en énergie, mais ils deviennent mauvais et polluants quand ils sont en fin de vie. Il est donc impératif d'évaluer cette complexité des matériaux polymères dans son ensemble, le rhéologue seul a forcément une vision trop étroite, même si c'est un bon rhéologue. A vrai dire, je n'ai jamais rencontré dans ma carrière de mauvais rhéologues !

5. Responsables mais pas coupables ?

La production annuelle de plastiques est estimée à 350 millions de tonnes dans le monde. Que représente ce chiffre exactement ? Est-ce peu ou beaucoup ? Combien en consommons-nous individuellement ? Nous sommes environ 8 milliards d'êtres humains sur notre planète, chacun d'entre nous consomme donc environ 40 kg de plastiques par an. C'est une moyenne à l'échelle mondiale, la consommation d'un français ou d'un européen est plus proche de 100 kg. A titre de comparaison, nous consommons par personne 225 kg/an d'acier. En volume, la consommation de plastiques est donc plus importante que

celle de l'acier. Plus globalement, la consommation en volume de plastiques est sensiblement identique à celle des métaux. En conclusion, il nous est difficile de revenir en arrière dans un monde sans polymères, de même que l'on ne peut pas non plus imaginer un monde sans métaux !

Alors sommes-nous responsables de toute cette pollution ? 30 ans auparavant, lors de l'âge d'or de la rhéologie, la pollution des plastiques était uniquement associée à la pollution visuelle créée par les sacs en plastique. Le polymère constituant ces sacs est le LDPE dont les propriétés rhéologiques élongationnelles sont favorables à sa filmification, comme tout rhéologue le sait. Puis le 7^{ème} continent des plastiques est apparu, suivi de l'impact des micro-plastiques sur l'ensemble de la chaîne alimentaire. Très récemment, l'article suivant a été publié dans Santé Magazine : Des traces de microplastique retrouvées dans des fœtus. Tout cela devient bien sérieux et préoccupant, même si le mot « polymère » n'est toujours pas utilisé, mais cela ne saurait tarder et, de toute façon, cela ne change rien à la nature du problème.

Quelle réponse doit apporter le scientifique, même s'il n'est qu'un simple rhéologue ? Tout rhéologue qu'il est, il est un maillon de la production de ces plastiques, il serait indécent et irresponsable de faire porter cette responsabilité au chimiste seul ! En fait, ce n'est pas une réponse que l'on doit apporter, mais une solution, ou plutôt des solutions, compte tenu de la complexité des plastiques. Le premier réflexe naturel est un réflexe d'auto-défense, en se justifiant sur le bien-fondé des plastiques et les progrès technologiques qu'ils ont permis d'apporter, en médecine par exemple. C'est une défense insuffisante, expliquer aux anti-vaccins que la vaccination a permis d'éradiquer les maladies infantiles qui étaient un véritable fléau jusqu'au début du siècle dernier est un argument insuffisant en ce début du XXI^{ème} siècle, car c'est le passé et l'on doit se projeter vers l'avenir.

Quelles sont alors les solutions pour nos plastiques ? Ignorer ces problèmes environnementaux et sociétaux en prétextant que l'on travaille sur les polymères et non pas sur les plastiques n'est certainement pas la bonne solution. Ne plus utiliser de plastiques en changeant nos modes de vie, c'est plutôt manifester une prise de conscience que tenter de résoudre le problème. Les bio-plastiques et/ou polymères biosourcés sont des solutions développées par les chercheurs et les industriels, mais cela change-t-il réellement quelque chose au problème ? Le bio-polyéthylène, et oui il existe, est une véritable hérésie environnementale mais, en termes de communication auprès du commun des consommateurs de plus en

plus vert, c'est assez percutant ! En fait, on peut comparer les bioplastiques aux biocarburants : les bio-carburants ont-ils répondu aux défis de la diminution des émissions de CO₂ et contribueront-ils à la transition énergétique et écologique ? Les solutions actuelles ont pris le virage de la voiture électrique en attendant l'avènement de l'hydrogène dans dix ans. Ces quelques lignes sur les bioplastiques risquent de m'attirer les foudres d'un nombre de collègues de plus en plus nombreux sur ce sujet. En fait, oui, les bioplastiques vont progressivement substituer les plastiques, non parce qu'ils sont meilleurs pour l'environnement, on peut le penser toutefois, mais parce qu'en raison de la transition écologique certains grands groupes pétroliers vont abandonner d'ici à peine vingt ans la production traditionnelle des plastiques usuels : marges bénéficiaires faibles, mauvaise image de marque, changement stratégique sur la production d'énergie, etc... Paradoxalement, la pénurie des plastiques est fort probable dans quelques années.

Alors, les polymères, quelles solutions ? Le recyclage est une des solutions, elle n'est pas nouvelle, mais les chercheurs travaillant dans ce domaine ces dernières années étaient particulièrement mal considérés par leurs pairs. Ne polémiquons pas et avançons. Le rhéologue, allié au formulateur (formulateur : physico-chimiste ayant plus de 20 ans d'expérience pratique), sait traiter les difficultés associées à la mise en œuvre et en forme de polymères issus du recyclage en raison des variations de microstructures plus ou moins importantes qu'ont subies les polymères, sans oublier la variabilité de la matière première recyclée, même après un tri sélectif, qui nécessite des fenêtres de processabilité souvent adaptées. Par exemple, la difficulté du recyclage iso-fonction de pare-chocs de voiture repose sur un cahier des charges strict, comme illustré sur la Figure 5. Pourquoi un cahier des charges aussi strict ? Tout simplement pour des raisons de sécurité, de mise en forme et d'exigence du consommateur. C'est assez simple : un pare-chocs, comme son nom l'indique, doit protéger des chocs, mais surtout protéger un piéton malchanceux. Le pare-chocs doit se déformer pour absorber une partie de l'énergie sans atteindre la rupture. Un pare-chocs de voiture est mis en forme par injection, un des plus anciens procédés de mise en forme, dont la technologie n'a cessé d'évoluer pour injecter des pièces extrêmement complexes, comme ce pare-chocs. Malheureusement, les polymères ont une viscosité élevée et présentent un retrait lors de la cristallisation. La conséquence est que le moule pour injecter un pare-chocs pesant environ 5 kg, pèse près de 15 tonnes et que la machine à injecter devra vaincre des

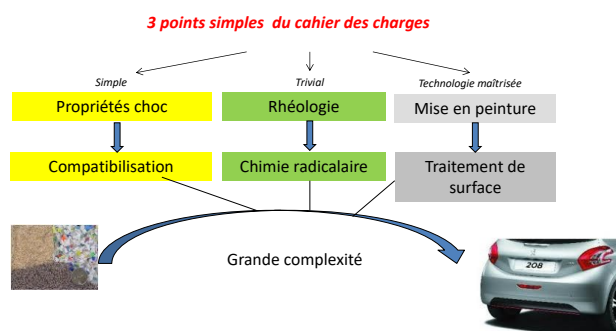


Figure 5. Cahier des charges pour un pare-chocs issu de polymères recyclés (recyclage iso-fonction) (d'après Massardier et al. (2019)).

contraintes d'origine visqueuse extrêmement élevées (on parle plutôt de tonnes de fermeture ; pour un pare-chocs, la force de fermeture est de 5000 tonnes environ). La solution pour diminuer la masse du moule et la taille de la presse, et donc l'énergie nécessaire à la fabrication du moule, est de diminuer la viscosité du polymère (ou augmenter son grade en vocabulaire du métier). Soyons fous, imaginons une formulation polymère qui aurait la viscosité de l'eau : on pourrait alors élaborer ce pare-chocs chez soi, avec un moule ne pesant peut-être pas plus de 100 kg. Malheureusement, tout le monde sait que les propriétés mécaniques sont associées à la masse molaire et donc cette idée est totalement farfelue. Ou alors, sans aller jusqu'à la viscosité de l'eau, peut-on imaginer des systèmes, type supramoléculaire ou autres, qui pourraient répondre à cette exigence de viscosité et de propriétés ? Toujours est-il que le grade du polymère doit être le plus élevé possible sans pour autant perdre sur la propriété au choc. A titre d'exemple, les grades des polyoléfinés pour ce type d'application étaient aux environs de 12 dans les années 2000, à l'heure actuelle ils sont proches de 25. Peut-on encore augmenter ? En d'autres termes, peut-on encore diminuer la masse molaire des polymères en les formulant judicieusement tout en conservant les propriétés mécaniques requises ? C'est un réel défi pour le rhéologue qui devient donc formulateur malgré lui. Enfin, le client consommateur exige une voiture parfaite : cet élément de plastique que constitue le pare-chocs ne doit avoir aucun défaut visuel. Mais la mise en peinture d'un pare-chocs issu de pare-chocs recyclés contient forcément des impuretés de toute nature (charges, fragments de peinture, huiles, graisses, etc.) qui induisent des défauts d'aspect de surface. Voilà, à titre d'exemple, la réelle complexité du recyclage iso-fonction et, illustrées d'une manière générale, les difficultés de la valorisation des matières plastiques pour leur donner une nouvelle vie. Dans cet exemple, la rhéologie est importante mais pas suffisante ; pourtant, au départ, il

s'agit d'un procédé de mise en forme des plus classiques.

Un des freins au développement de ces technologies de recyclage est souvent la collecte et le tri des matières plastiques. L'autre frein est le modèle économique et la perception du consommateur quant aux matériaux recyclés.

Le modèle qui émerge à l'heure actuelle est le modèle de l'économie circulaire. C'est le modèle le plus vertueux, de plus il ne concerne pas uniquement les plastiques mais l'ensemble des matériaux et de tous les biens de consommation, y compris ceux issus de la biomasse. Mais que cela signifie-t-il ? La littérature scientifique et technique, et surtout Internet, contiennent beaucoup de schémas plus ou moins illustratifs en fonction des qualités artistiques des auteurs. N'en ayant absolument aucune, l'économie circulaire peut être schématisée comme sur la Figure 6 :

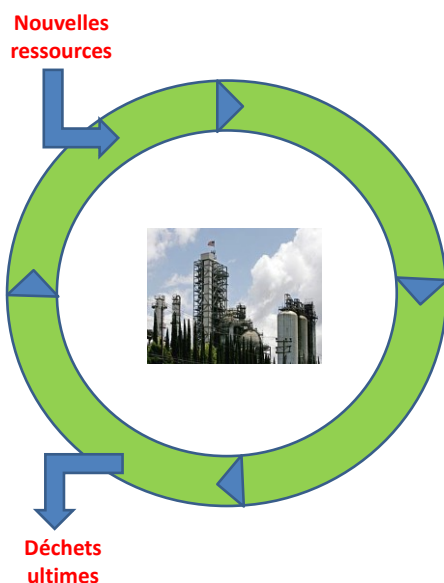


Figure 6. Economie circulaire schématisée par un rhéologue

Le rhéologue est toutefois habitué à faire quelques petits calculs. Revenons à notre consommation annuelle de 350 millions de tonnes de plastiques qui correspond en fait à une production annuelle de 350 millions de tonnes puisque nous sommes toujours dans une économie linéaire. Admettons que ce principe d'économie circulaire soit mis en place dès maintenant et que l'on estime à 10 ans la durée d'utilisation d'un matériau plastique, donc seulement 250 millions de tonnes (production de 2010, et oui, la croissance annuelle des plastiques est proche de 10%) peuvent-être intégrés dans ce cercle vertueux. Mais si l'on estime que 20% de ces plastiques auront disparu pour diverses raisons, il ne reste plus que 200 millions

de tonnes de plastique dans la boucle, qu'il faut nécessairement compléter de 150 millions de tonnes issues de la production de polymères vierges. Ce calcul est en fait très approximatif car les durées de vie sont extrêmement différentes : gobelets : 1 h, emballages agro-alimentaires : 1 mois, bouteille d'eau : 1 an, ordinateur portable et électroménager : 5 ans, pare-chocs de voiture : 10 ans, menuiseries : 25 ans, canalisations enterrées ou isolation des bâtiments : 50 ans. Malgré ces grandes différences, la fin des plastiques à usage unique et une économie circulaire des plus optimistes et des plus performantes, la production de plastiques primaires restera élevée. Nous voilà donc avec un verre à moitié plein ou à moitié vide. Retenons plutôt le côté positif sur la base de la prise de conscience des industriels et de leurs actions pour développer et intégrer l'économie circulaire dans leurs réflexions. En effet, beaucoup de projets portent actuellement sur la dépolymérisation (le PET est l'exemple le plus ancien et le plus connu), mais cette stratégie se développe également pour les silicones, les caoutchoucs et les polyoléfinés. Le rhéologue, avec son expertise, est toujours présent, en appui pour préciser si les structures des polymères ainsi régénérés sont bien celles attendues pour le contrôle de la mise en forme. Cette prise de conscience et ces nouvelles voies d'industrialisation qui s'annoncent, certes imposées par la demande sociétale et le risque de sanctions financières en raison des nouvelles réglementations, nous écartent de toute culpabilité mais renforcent nos responsabilités d'acteurs dans le secteur scientifique et industriel des matières plastiques.

6. Conclusion

La découverte, par le plus grand des hasards, d'une extrudeuse monovis des années 1920 pour la mise en œuvre et en forme de briques d'argile m'a amené bien loin dans ma réflexion sur la rhéologie des polymères, communément appelés, du moins pour certains, plastiques. Peu de science dans cet article, mais une réflexion sur l'évolution de notre communauté de rhéologues travaillant dans le domaine des polymères.

J'ai situé l'âge d'or de la rhéologie des polymères fondus à la fin du siècle dernier, du fait que peu de travaux réellement conceptuels aient été menés depuis. Cela ne signifie pas pour autant que les travaux actuels soient sans intérêt, mais ils reposent essentiellement sur ces acquis des années antérieures. La rhéologie des polymères fondus ne serait-elle plus qu'une technique et le rhéologue devenu un ingénieur éclairé ? Absolument pas, cette rhéologie s'applique maintenant à des systèmes beaucoup plus complexes,

en intégrant de plus de nouvelles fonctions, et si possible en prenant en compte les aspects environnementaux et d'économie circulaire. Cette approche est beaucoup plus riche mais le rhéologue ne doit pas pour autant oublier les fondamentaux de sa discipline. A ce titre et malgré les évolutions rapides des matériaux polymères et des exigences sociétales, la rhéologie reste et demeurera intemporelle, un cours de rhéologie débutera toujours par la loi de Newton et/ou par le tenseur des contraintes et des déformations ! Toutefois, comme suggéré par notre Président du GFR (G. Della Valle) après lecture de cet article, le cours de rhéologie pourrait également commencer par la découverte de « l'encyclique » de rhéologie (<http://thot.i2m.u-bordeaux.fr/Rheologie>) qu'il a créée et enrichie ces dernières années.

Remerciements

Je remercie vivement Jean-François Agassant et Louis Vovelle pour leurs commentaires et conseils pour la finalisation de cet article. Je dédie cet article à la mémoire de Mme Maité Miramon, institutrice à l'école de Castetpugon (1955-1980) dont la mission sacrée, s'appuyant sur des méthodes pédagogiques modernes, était d'apprendre aux enfants de paysans béarnais la règle de 3 (et la preuve par 9). Pour rappel, la loi de Newton et bien d'autres lois sont tout simplement des lois linéaires !

Références

- Agassant J.F., Avenas P., Sergent J.Ph., Vergnes B., Vincent M. *La mise en forme des matières plastiques*, 3^{ème} Edition, Lavoisier (1996).
- Agassant J.F., Avenas P., Sergent J.Ph., Vergnes B., Vincent M. *La mise en forme des polymères*, 4^{ème} Edition, Lavoisier (2014).
- Carreau P.J., Rheological equations from molecular network theories, *Trans. Soc. Rheo.*, 16, 99-127 (1972).
- Carrot C., Guillet J. Viscoélasticité linéaire des polymères fondus, *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3620 (1999).
- Carrot C., Guillet J. Viscoélasticité non-linéaire des polymères fondus, *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3630 (2000).
- De Gennes P.G. Reptation of polymer chain in presence of fixed obstacles, *J. Chem. Phys.*, 55, 572 (1971).
- Doi M., Edwards S.F. *The Theory of Polymer Dynamics*, Oxford Science Publications (1986).
- Ferry J.D. *Viscoelastic Properties of Polymers*. John Wiley, New York, 1st ed. (1961), 2nd ed., (1970), 3rd ed., (1980).
- Massardier V., Cassagnau P., Viot F., Recyclage des polymères thermoplastiques. Exemple de recyclage industriel de polyoléfines et perspectives. In : Bounor-Legaré V. et Cassagnau P. (Eds.) *Extrusion réactive : des aspects fondamentaux aux développements industriels*, Hermès (1999).
- Palierne J.F. Linear rheology of viscoelastic emulsions with interfacial tension, *Rheol. Acta*, 29, 204-214 (1990).
- Staudinger H., Über Polymerisation, *Ber. Dtsch. Chem. Ges.*, 53, 1073 (1920).
- Winter H.H., Chambon F. Analysis of linear viscoelasticity of a crosslinking polymer at the gel point, *J. Rheol.*, 30, 367-382 (1986).

From the old world of plastics to the new world of polymeric materials: Timeless rheology

This article is absolutely not scientific; no experiments, no equations, some figures certainly, but which could not have been published in peer review journal. This is the freedom of our journal "Rhéologie". Was there ever a golden age of the rheology of plastics? I wrote "plastics", what a wretch I am, I pollute the soil, the rivers and I created a 7th continent. But no, my laboratory is called Polymeric Materials Engineering. Phew, not the word plastic, not even the word chemistry, I am getting out of this nightmare where I saw myself engulfed and suffocated by all this garbage, some of which had beautiful colors, I must admit. But will I be able to fall asleep peacefully tonight? So, does the simple rheologist that I am only think about his experiments, his contracts, his ANR and European projects or his scientific-political ambitions at the University? In other words, does the rheologist have a conscience or even a thought? You will find out by reading this article in full!

Conception d'une cellule de Couette excentrée transparente pour l'étude du comportement d'écoulement de fluides visqueux à l'interface avec la paroi

P. Thirunavukkasaru^{1,2}, R. Castellani¹, F. Fournier¹, E. Peuvrel-Disdier¹, A. Pignolet¹, R. Valette¹, B. Vergnes¹

¹ MINES ParisTech, PSL Research University, CEMEF – Centre de Mise en Forme des Matériaux, UMR CNRS 7635, CS 10207, 06904 Sophia-Antipolis

² Manufacture Française des Pneumatiques Michelin – Ladoux, 63118 Cébazat

Reçu le 25 mars 2021 - Version finale acceptée le 10 mai 2021

Résumé : Nous avons développé un prototype pour observer le comportement en écoulement de fluides visqueux (10^3 à 10^5 Pa.s) sous cisaillement avec des surfaces libres. La géométrie est une cellule de Couette excentrée où les deux cylindres peuvent tourner dans le même sens ou en sens opposé. Des fenêtres transparentes permettent des observations *in-situ* pendant l'écoulement. Nous présentons ici la conception, le développement et les premiers tests de ce prototype avec une gomme silicone. Le comportement en écoulement du fluide est étudié à faible taux de remplissage de la cellule, de façon à observer les lignes triples et les surfaces libres dans des conditions d'écoulement contrôlées, à la fois en mode co- et contrarotatif. Une attention particulière a été portée à la détermination de conditions d'écoulement en régime permanent.

Mots clés : Cellule de Couette, Fluide visqueux, Surface libre, Ligne triple.

[Abridged English version on last page]

1. Introduction

La connaissance de l'écoulement aux interfaces est primordiale pour simuler un écoulement car cela requiert la définition de conditions aux limites réalistes. Les écoulements interfaciaux peuvent concerner différentes interfaces : des interfaces solide/fluide (condition de glissement ou non-glissement), des interfaces fluide/fluide (mélanges de polymères immiscibles, procédés de coextrusion multicouches), des interfaces solide/fluide/air (dynamique des lignes triples), et des interfaces fluide/air (surfaces libres). Cette étude a pour objectif d'étudier la dynamique des lignes triples et la forme des surfaces libres dans le cas de fluides de forte viscosité soumis à un écoulement de cisaillement.

L'étude de la dynamique des lignes triples, initiée au début du XX^{ème} siècle [1-6], est restée un domaine de recherche actif (voir par exemple [7-10]) en raison du caractère omniprésent des phénomènes de mouillage et d'étalement, tant dans la nature que dans de nombreux procédés industriels (revêtements de surface, peintures...). La simple description physico-

chimique de l'interface d'une goutte sur un substrat solide en mouvement est complexe et nécessite une description multi-échelle du fluide au niveau de la ligne triple (voir par exemple [7, 11, 12]). D'un point de vue mécanique, le mouvement de la ligne triple sur une surface solide viole la condition aux limites de non-glissement et conduit à une singularité de contrainte au niveau de cette ligne triple [10, 13, 14]. La plupart des travaux cités ont été menés dans le cas de liquides simples et de fluides de faible viscosité, pour lesquels la tension superficielle joue un rôle dans l'équilibre des forces à l'interface. La situation dans le cas d'un fluide visqueux est différente car l'écoulement est dominé par les forces visqueuses (la tension superficielle étant négligeable), avec des phénomènes potentiels de dissipation visqueuse.

La compréhension du mouvement de lignes triples dans les procédés de mise en forme des polymères a commencé dans la seconde moitié du XX^{ème} siècle. Cette démarche a impliqué l'introduction d'outils à parois transparentes pour permettre des observations *in situ* de l'écoulement. Par exemple, les écoulements interfaciaux ont été étudiés dans des filières trans-

parentes en sortie d'extrudeuses pour visualiser les conditions de glissement, les régimes d'écoulement et les instabilités associées [15, 16]. Des parois transparentes ont également été utilisées dans des mélangeurs internes pour observer le processus de mélange de polymères hautement visqueux et étudier le rôle de la géométrie des rotors [18-22]. Cependant, ces observations sont complexes car tridimensionnelles et transitoires par nature, en raison du transfert continu de fluide d'une chambre de mélange à l'autre et de la géométrie 3D des rotors. Des conditions d'écoulement simplifiées ont donc été utilisées pour étudier l'efficacité de la géométrie du rotor, en utilisant un seul rotor tournant dans une chambre cylindrique transparente [23].

La cellule de Couette excentrée avec un passage fin entre les deux cylindres est vite apparue comme une géométrie simplifiée logique de l'écoulement dans un mélangeur. Cette géométrie a été utilisée pour étudier la cinématique du mélange distributif [24-26]. Ces observations ont été menées sur des fluides modèles (à température ambiante, de faible viscosité, inférieure à 10 Pa.s) et sur un domaine entièrement rempli (cylindres verticaux) ne permettant pas l'observation de surfaces libres, ni de lignes triples.

Le comportement des interfaces fluide/gaz peut être étudié avec des cellules de Couette excentrées lorsqu'un petit volume de fluide est introduit dans la zone de faible entrefer entre les cylindres (cylindres horizontaux). Cette configuration d'écoulement a été utilisée pour simuler le procédé de revêtement d'un substrat solide par un fluide dans les applications de couchage et pour étudier les instabilités qui se développent à l'interface [27-29].

Cet article présente la conception et le développement d'une cellule de Couette excentrée transparente, où les deux cylindres peuvent tourner de manière indépendante, et dédiée aux fluides de forte viscosité (10^3 à 10^5 Pa.s). L'objectif est d'étudier l'écoulement de petits volumes de fluide dans la région de faible entrefer entre les cylindres, en observant les surfaces libres et les lignes triples en régime permanent. Nous présentons les premières observations effectuées avec un fluide silicone à température ambiante, dans des conditions co- et contrarotatives. Cette première étape vise à déterminer des configurations d'écoulement favorables à l'observation des lignes triples et des surfaces libres. L'intérêt de l'étude de surfaces libres et lignes triples est de caractériser la capacité d'entraînement du fluide par des pièces en mouvement, que l'on peut rencontrer dans des procédés de mélange. Cette capacité résulte des contributions respectives des effets visqueux, de glissement et

d'adhésion. Le poids respectif de ces contributions pourrait être retrouvé en associant cette étude à une modélisation de l'écoulement [30].

2. Description du prototype

2.1. Principe des essais

La cellule de Couette excentrée a été choisie pour avoir une zone localisée de forts taux de cisaillement autour de la région de faible entrefer entre les cylindres. Le mouvement du fluide est créé par la rotation des deux cylindres, pilotés par des moteurs indépendants permettant leur rotation dans les deux sens (Fig. 1). Nous nous sommes plus particulièrement intéressés au comportement du fluide pour de faibles taux de remplissage, permettant d'observer les surfaces libres et les lignes triples dans des conditions d'écoulement contrôlées et stationnaires.

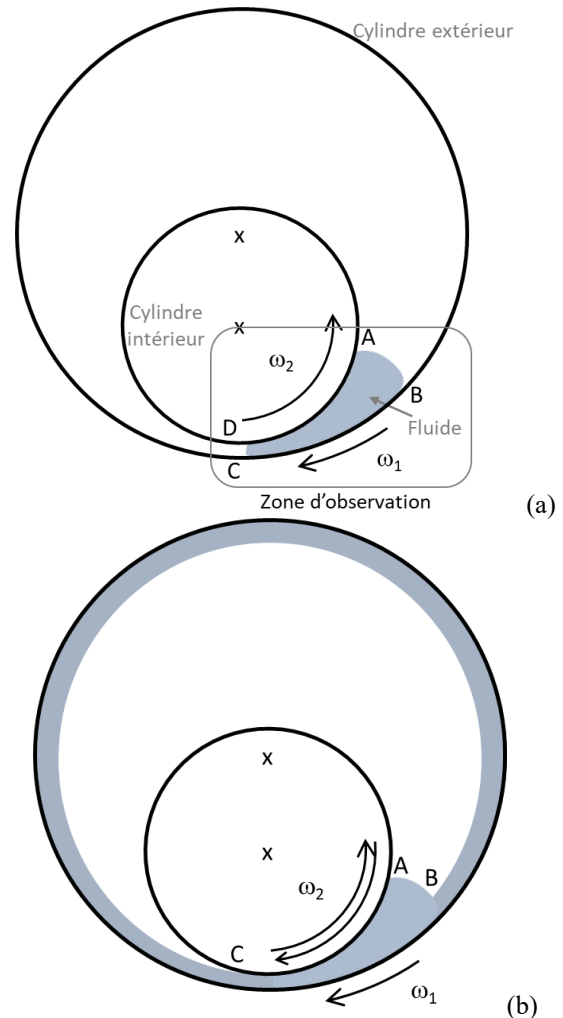


Figure 1. Représentation schématique de l'écoulement en régime stationnaire (a) d'un petit volume de fluide $\mathcal{V}_{inf}$ en mode contrarotatif et (b) d'un volume plus important $\mathcal{V}_{sup}$ en mode co- ou contrarotatif. ω_1 et ω_2 sont les vitesses angulaires des cylindres. L'indice 1 fait référence au cylindre extérieur, 2 au cylindre intérieur.

Deux configurations d'écoulement sont distinguées :

- celle d'un petit volume de fluide, noté $\mathcal{V}_{inf}$, introduit dans la zone convergente entre les deux cylindres (Fig. 1a). Cette configuration permet, en mode contrarotatif, de suivre la dynamique de quatre lignes triples (indiquées par les lettres A, B, C et D) et de deux surfaces libres (surfaces AB et CD). Sur la Figure 1a, A et C sont des lignes de reculée, tandis que B et D sont des lignes d'avancée ;
- celle d'un volume plus important, noté $\mathcal{V}_{sup}$, permettant la formation d'une couche uniforme de fluide le long du cylindre extérieur et d'un volume de fluide recirculant dans la région amont de l'entrefer entre les cylindres, situation rencontrée en mode co- ou contrarotatif (Fig. 1b). Dans ce cas, le volume de fluide recirculant est en contact d'un côté avec le cylindre intérieur et de l'autre avec la couche du même fluide. Ici, deux lignes triples en contact avec le cylindre intérieur (A et C) et une seule surface libre (surface AB) peuvent être observées.

2.2. Description du prototype

La cellule de Couette a été conçue pour fonctionner avec des fluides de forte viscosité (jusqu'à 10^5 Pa.s, plage de viscosité typique des élastomères crus) et être contrôlée en température jusqu'à 100°C . Travailler à température contrôlée avec des fluides très visqueux, avec des cylindres pouvant tourner dans les deux directions et munis de fenêtres transparentes, constitue l'originalité du système. Une vue globale de la cellule de Couette et des éléments auxiliaires est présentée sur la Figure 2.

Le dispositif est constitué par :

- la cellule de Couette transparente avec ses moteurs ;
- un système de chauffage comprenant deux bains thermostatés ;
- un joystick pour piloter manuellement les cylindres, couplé à une interface informatique pour piloter les moteurs et enregistrer les paramètres ;
- un système d'imagerie, composé de systèmes d'éclairage et d'enregistrement.

Le rayon du cylindre extérieur ($R_1 = 89,5$ mm) a été choisi pour avoir une zone d'observation suffisamment grande dans la région de faible entrefer. Celui du cylindre intérieur (R_2) est de 43,75 mm pour avoir un rapport de diamètres proche de 2:1. L'entrefer h_0 est réglable dans une plage de 3 à 11 mm. Les rayons des cylindres intérieur et extérieur et l'entrefer définissent l'excentricité entre les axes de rotation des cylindres. La profondeur de la chambre w (égale à la longueur des cylindres, $w = 30$ mm) a été choisie aussi grande que possible. Cela permet d'exacerber le rapport d'aspect de l'écoulement, qui tendra alors à être bidimensionnel tout en permettant des observations au travers du fluide.

Contrairement à la surface du cylindre extérieur, celle du cylindre intérieur est amovible, afin de pouvoir modifier sa nature (composition, rugosité, etc.). Dans la suite, les surfaces des cylindres intérieur et extérieur sont similaires, en acier 42Cd4 avec la même rugosité.

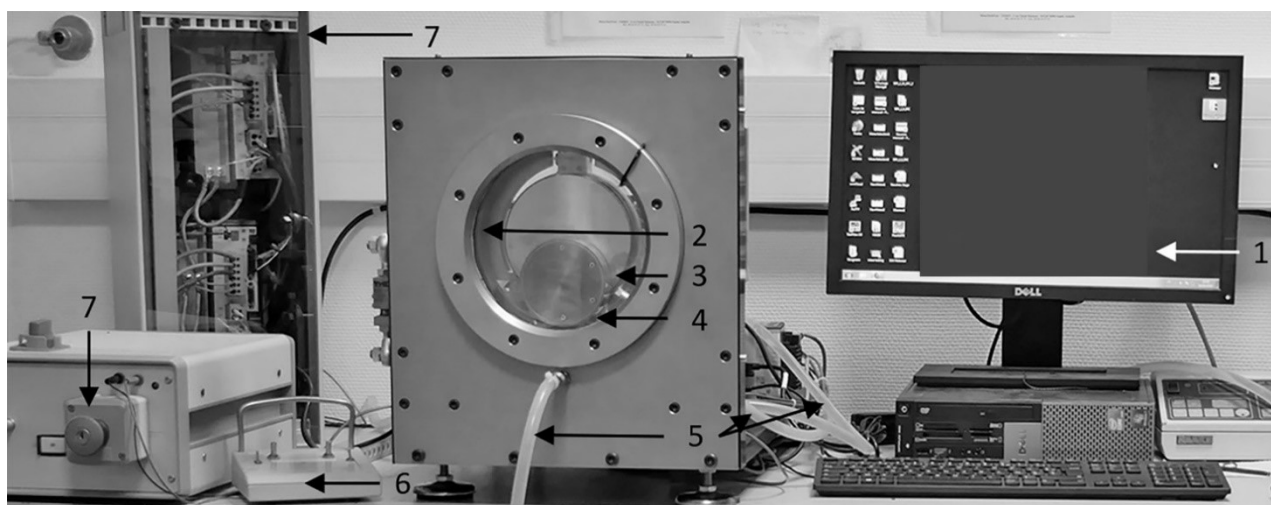


Figure 2. Cellule de Couette et son environnement : 1. PC de contrôle, 2. Surface du cylindre extérieur, 3. Surface du cylindre intérieur, 4. Zone d'observation entre les deux cylindres, 5. Connections du fluide caloporteur avec les bains thermostatés, 6. Joystick pour régler les sens de rotation des cylindres et leurs vitesses. 7. Armoire de commande.

Les observations de l'écoulement se font par transmission à travers deux fenêtres transparentes, fabriquées en verre borosilicaté recuit pour résister aux contraintes générées par l'écoulement du fluide visqueux et les variations de température. La fenêtre avant est circulaire. La fenêtre arrière est annulaire du fait de la présence de l'axe de rotation du cylindre intérieur. Elles sont fixées de part et d'autre du cylindre extérieur par des brides annulaires et des vis et tournent ainsi à la même vitesse que le cylindre extérieur. L'introduction du fluide et le nettoyage sont réalisés par démontage et remontage de la fenêtre avant.

Les cylindres intérieur et extérieur sont chauffés par circulation d'un fluide caloporteur (huile silicone Julabo™ 8940114, Seelbach, Allemagne) relié à deux bains thermostatés indépendants. La rotation des cylindres est assurée par des moteurs brushless indépendants (MDP, Neyron, France).

Le couple maximal fourni par les moteurs est respectivement de 100 Nm et 50 Nm pour les cylindres extérieur et intérieur, avec des vitesses de rotation théoriques maximales respectivement de 120 et 85 tr/min, donnant un taux de cisaillement théorique maximum autour de 450 s^{-1} pour le plus faible entrefer. Les premières observations rapportées dans ce travail ont été réalisées dans une fenêtre de vitesses plus restreinte : respectivement 0-16 et 0-3,2 tr/min pour les cylindres extérieur et intérieur, soit un taux de cisaillement maximum de 35 s^{-1} en mode contra-rotatif. Le couple est mesuré sur chaque axe moteur via des bras de levier de 100 mm et des jauges de contrainte. Deux thermocouples sont placés dans les espaces creux des deux cylindres pour contrôler la température du fluide caloporteur. Un troisième thermocouple peut être inséré dans un trou à travers la fenêtre avant pour mesurer la température du matériau à la fin de l'expérience. Les différentes informations collectées par les capteurs sont affichées sur un PC et enregistrées en fonction du temps, grâce à un programme développé sous LabView®.

L'appareil permet de faire varier la nature (tension de surface) et le comportement rhéologique du fluide utilisé, le volume de fluide introduit, les sens de rotation des cylindres, leur vitesse, l'entrefer h_0 , la température, la nature (limitée au cylindre intérieur) et la rugosité des surfaces des cylindres, avec la possibilité d'avoir des conditions asymétriques, la nature de la fenêtre transparente. Dans cet article, seuls le volume de fluide, la direction et les vitesses des cylindres ont été modifiés, les autres paramètres étant fixés.

3. Résultats et discussion

Un fluide silicone transparent à forte viscosité a été sélectionné pour les premiers essais (Liquid Glass Thinking Putty®, Crazy Aaron, Nebraska, USA). Sa courbe de viscosité suit une loi de type Carreau-Yasuda, caractérisée à température ambiante par une viscosité newtonienne de $2,2 \cdot 10^4 \text{ Pa.s}$, un indice de pseudoplasticité de 0,36, un temps de relaxation de 0,86 s et un paramètre de Yasuda de 0,69. Les essais présentés dans cet article ont été réalisés à cette température.

3.1. Détermination du volume de fluide

Les volumes d'intérêt sont déterminés sur la base de considérations géométriques. Le grand volume de fluide $\mathcal{V}_{sup}$ (Fig. 1b) correspond à un volume supérieur au volume formant une couche continue d'épaisseur h_0 autour du cylindre extérieur ($\mathcal{V}_{h_0} = 8,7\%$ du volume libre de la cellule de Couette). Le petit volume $\mathcal{V}_{inf}$ (Fig. 1a) est par définition inférieur à $\mathcal{V}_{h_0}$. Il est en pratique limité à 4,5%. L'objectif est de déterminer les configurations d'écoulement dans lesquelles les lignes triples et les surfaces libres peuvent être observées à des endroits fixes par rapport au laboratoire. Pour cette raison, la première étape du travail a été de tester les différentes conditions d'écoulement en jouant avec le volume de fluide, le sens de rotation des cylindres et leurs vitesses, afin de déterminer les conditions de régime permanent. Les vitesses mentionnées par la suite font référence aux vitesses linéaires de la surface de chaque cylindre.

3.2 Rotation d'un seul cylindre

La mise en rotation, ici du cylindre extérieur (fixée dans le sens horaire dans l'ensemble du travail), entraîne l'écoulement du fluide lorsque ce dernier se retrouve en contact avec les deux cylindres. Le fluide est cisailé et légèrement mis sous pression dans la zone de convergence. Le passage du fluide à travers l'entrefer h_0 conduit au dépôt d'une couche uniforme, dont l'épaisseur est très proche de celle de l'entrefer. Ce film tourne à la même vitesse que la surface du cylindre extérieur et celle des fenêtres transparentes. La longueur de la couche déposée est fixée par l'entrefer minimum et le volume introduit.

3.3. Cylindres en co-rotation

Après l'introduction du volume de fluide, la vitesse du cylindre extérieur est d'abord fixée, puis celle du cylindre intérieur est progressivement augmentée. La vitesse du cylindre extérieur est alors augmentée à son tour et ainsi de suite. Dans le cas d'un petit volume de fluide ($\mathcal{V}_{inf}$), aucune observation en régime permanent ne peut être obtenue. La situation est

proche du cas précédent : le fluide se déforme lors du passage de l'entrefer h_0 , avec formation d'un film d'épaisseur uniforme sur la surface du cylindre extérieur.

Au contraire, l'écoulement de volumes de fluide plus importants ($\mathcal{V}_{sup}$) conduit toujours à une situation stationnaire, quelles que soient les vitesses des cylindres (Fig. 3).

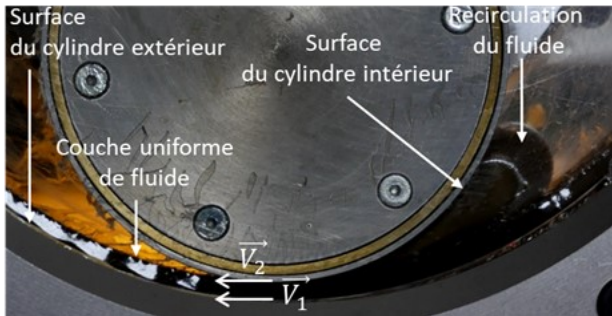


Figure 3. Observation de l'écoulement en co-rotation, dans le cas d'un grand volume de fluide.

Comme pour le petit volume, le passage du fluide dans l'entrefer conduit d'abord à la formation d'une couche uniforme, jusqu'à l'obtention d'une couche continue sur le cylindre extérieur. L'excès de volume conduit alors à la formation d'un bourrelet de fluide en recirculation, comme cela est observé dans certains procédés de couchage [27] ou de calandrage [30]. Le volume du bourrelet est contrôlé par le volume introduit, l'entrefer minimal et les vitesses relatives des cylindres.

3.4. Cylindres en contra-rotation

Trois types de conditions d'écoulement peuvent être observés dans le cas d'un petit volume de fluide ($\mathcal{V}_{inf}$), en augmentant la vitesse du cylindre intérieur ($\vec{V}_2$) à vitesse du cylindre extérieur fixe ($\vec{V}_1$) ($\vec{V}$ désigne la vitesse linéaire de surface des cylindres) :

- lorsque la vitesse du cylindre intérieur est petite devant celle du cylindre extérieur, $|\vec{V}_2| < |\vec{V}_1|$, il est impossible de stabiliser le fluide. Le fluide est entraîné dans le sens de rotation du cylindre extérieur dans le convergent. Le passage du fluide à travers l'entrefer h_0 conduit finalement à la séparation du volume en deux parties (Fig. 4a). Le volume dans le convergent (à droite) est stabilisé. Le volume détaché est entraîné par le cylindre extérieur et rejoint l'autre partie après un tour. Le volume total retrouve alors un comportement instationnaire;

- dans une plage optimale de vitesse du cylindre interne, avec $|\vec{V}_2| > |\vec{V}_1|$, le fluide peut être stabilisé entre les deux surfaces des cylindres (Fig. 4b), permettant des observations en régime permanent ;
- à une vitesse excessive du cylindre interne, $|\vec{V}_2| \gg |\vec{V}_1|$, l'écoulement est dominé par la rotation du cylindre intérieur et le fluide est entraîné dans cette direction. Le volume de fluide prend une forme plus cylindrique au fur et à mesure qu'il s'éloigne de la zone de faible entrefer. Il tourne sur lui-même comme un corps solide entre les surfaces des cylindres (Fig. 4c).

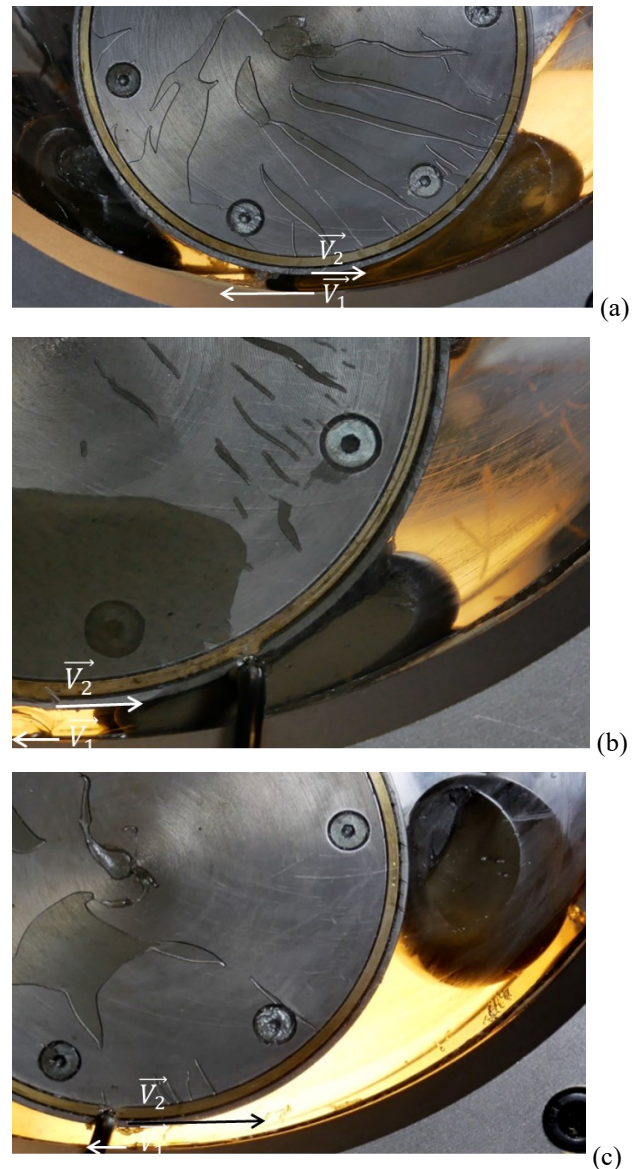


Figure 4. Observation de l'écoulement en contra-rotation, dans le cas d'un petit volume de fluide. (a) vitesse insuffisante du cylindre interne avec fragmentation du volume au niveau du passage au fin ; (b) vitesse optimale du cylindre interne ; (c) vitesse excessive du cylindre interne.

Dans les conditions optimales de stabilisation, le fluide est soumis à du cisaillement et du roulement. La stabilisation est obtenue pour des vitesses $|\vec{V}_2| > |\vec{V}_1|$. En effet, le cylindre intérieur doit tourner à une vitesse linéaire plus élevée pour contrebalancer l'entraînement du fluide par la surface du cylindre extérieur et aussi celle des fenêtres transparentes. Une fois que la vitesse optimale du cylindre interne est trouvée, le fluide est stabilisé.

Dans le cas d'un volume de fluide plus important ($\mathcal{V}_{sup}$), une couche uniforme est d'abord créée sur la surface du cylindre extérieur. Même en mode contra-rotatif, il existe aussi un volume de recirculation. Ce volume est principalement fixé par le volume de fluide initial et l'entrefer h_0 dans la plage de vitesses étudiée. Deux conditions d'écoulement peuvent être distinguées pour le volume de recirculation, en fonction de la vitesse du cylindre intérieur ($\vec{V}_1$ étant fixée) :

- jusqu'à une valeur critique $\vec{V}_{2crit}$ ($|\vec{V}_2| < |\vec{V}_{2crit}|$), le volume du fluide de recirculation (Fig. 5a) est stabilisé au niveau de l'entrefer.

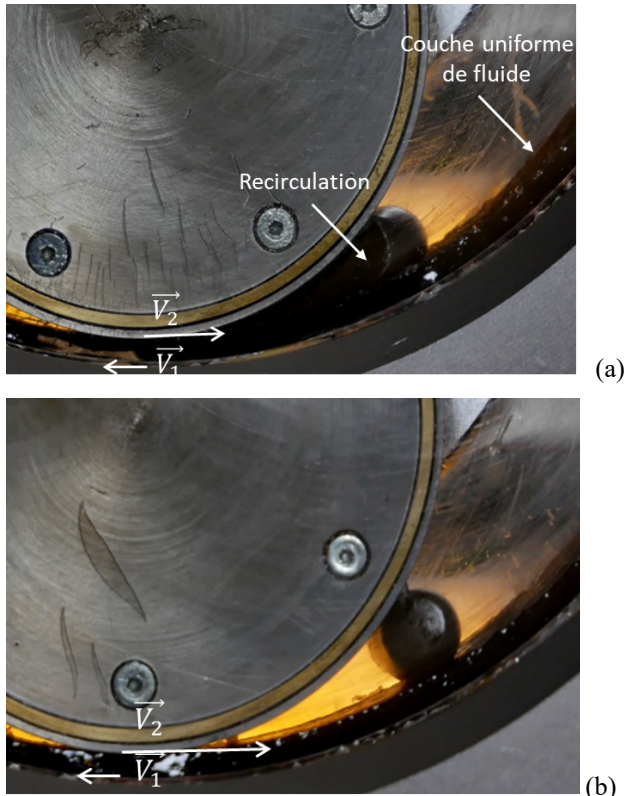


Figure 5. Observation de l'écoulement en contra-rotation, dans le cas d'un grand volume de fluide. (a) vitesse suffisante du cylindre intérieur pour stabiliser ; (b) vitesse excessive du cylindre intérieur.

Des observations à l'état d'équilibre sont possibles tant que la vitesse du cylindre intérieur ne domine pas l'écoulement, $|\vec{V}_2| > |\vec{V}_1|$;

- aux vitesses élevées du cylindre intérieur, $|\vec{V}_2| \gg |\vec{V}_1|$, le volume du bourrelet est progressivement éloigné de la zone de faible entrefer par le cylindre intérieur, puis séparé de la couche uniforme (Fig. 5b). Comme pour le petit volume de fluide, le volume en excès se retrouve sous la forme d'un cylindre tournant sur lui-même entre le cylindre intérieur et la couche uniforme déposée sur le cylindre extérieur.

3.5. Exemple de premières observations

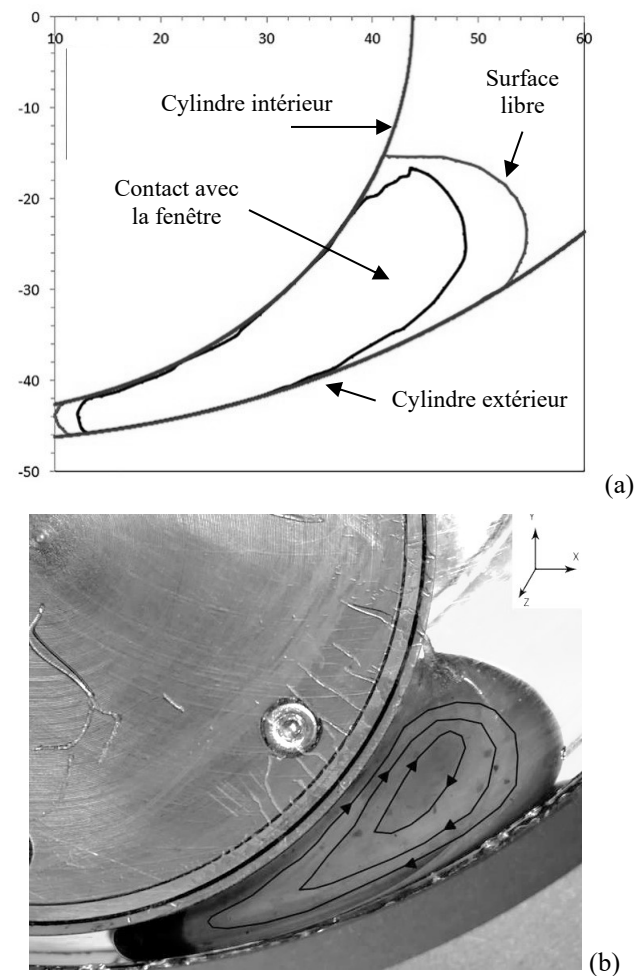


Figure 6. Exemples de mesure en configuration contra-rotative. (a) Profil latéral du volume de fluide ; (b) Visualisation des lignes de courant

Une fois l'écoulement stabilisé, différentes informations caractérisant le comportement du fluide en écoulement peuvent être extraites :

- la mesure du profil latéral du volume de fluide sous cisaillement par analyse d'image : un exemple est illustré sur la Figure 6a dans le cas

d'un mode contrarotatif. A partir d'un tel profil, il est notamment possible de caractériser la forme des surfaces libres (AB et CD sur la Fig. 1a), déterminer les surfaces en contact avec les parois et identifier la position des lignes triples ;

- l'observation du champ de vitesse ou des lignes de courant illustrant le mouvement du fluide à l'intérieur du bourrelet (Fig. 6b), visualisation possible grâce à la présence ou l'ajout de traceurs.

4. Conclusions

La caractérisation du comportement interfacial de fluides visqueux en écoulement reste un sujet ouvert. Les observations expérimentales sont importantes pour appréhender ce comportement, en particulier pour les fluides de forte viscosité. Une cellule de Couette excentrée transparente, permettant la rotation des cylindres intérieur et extérieur dans les deux sens, a été conçue et développée pour caractériser l'écoulement de petits volumes de fluide sous cisaillement contrôlé avec surfaces libres. Le prototype permet l'observation d'écoulements en régime transitoire ou établi, en contrôlant la direction et la vitesse de rotation des cylindres. Le comportement d'un fluide silicone a été étudié en faisant varier le sens de rotation des cylindres (co- ou contra-rotation), leur vitesse et le volume de fluide introduit. Différentes conditions d'écoulement permettant de stabiliser le volume de fluide dans l'entrefer et d'observer les surfaces libres et les lignes triples ont été identifiées :

- dans le cas d'un petit volume de fluide, ce volume peut être stabilisé en contra-rotation dans certaines conditions de vitesses des cylindres intérieur et extérieur ;
- pour un volume plus important avec une couche continue uniforme de fluide sur le cylindre extérieur, le volume en excès peut être stabilisé quelles que soient les vitesses des cylindres en mode corotatif et dans certaines conditions de vitesses en mode contrarotatif.

Le prototype développé peut permettre de caractériser l'écoulement interfacial via l'observation des surfaces libres (interfaces fluide/gaz), de la position des lignes triples, de la zone de contact interfaciale entre le fluide et les cylindres, aussi bien en régime permanent qu'en régime transitoire. L'effet de paramètres, comme la nature du fluide et son comportement rhéologique, le volume de fluide introduit, les vitesses et sens de rotation des cylindres, l'entrefer h_0 , la température, la rugosité des surfaces intérieure et extérieure des cylindres, et la nature de la surface du

cylindre intérieur, sur le comportement du fluide en écoulement interfacial peut être déterminé.

Une étude détaillée des conditions de stabilisation en mode contrarotatif du fluide silicone et de leur interprétation en termes d'adhésion et de la forme de surfaces libres au niveau des lignes triples fera l'objet d'un prochain article.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier leurs collègues Marc Bouyssou, Eric Brotons, Christelle Combeaud, Guillaume Corvec, Gilbert Fiorucci du CEMEF pour leur aide lors de la réalisation du prototype ou des essais et Céline Cohen de l'INPHYNI (Université Côte d'Azur) pour son implication dans la recherche de fluides modèles pour ce type d'essai.

Cette étude a été réalisée dans le cadre du projet OSUM, FUI AAP23, financée par BPIFrance. Le doctorat de Prashanth Thirunavukkarasu a fait l'objet d'une bourse CIFRE financée par l'ANRT et Michelin MFP. Des remerciements particuliers sont adressés à Bruno Dratz et Pascal Tremblay de Michelin pour leur implication et leurs échanges lors de ces travaux.

Références

- [1] G.D. West, On the resistance to the motion of a thread of mercury in a glass tube, *Proc. Roy. Soc.*, A 86 20-25 (1911)
- [2] R. Lucas, Über das Zeitgesetz des kapillaren Aufstiegs von Flüssigkeiten, *Koll.-Z.*, 23, 15-22 (1918).
- [3] E.W. Washburn, The dynamics of capillary flow, *Phys. Rev.*, 17, 273-283 (1921).
- [4] E.K. Rideal, On the flow of liquids under capillary pressure, *Phil. Mag.*, 44, 1152-1159 (1922).
- [5] R.N. Wenzel, Resistance of solid surfaces to wetting by water, *Ind. Eng. Chem.*, 28, 988-994 (1936).
- [6] A.B.D. Cassie, S. Baxter, Wettability of porous surfaces, *Trans. Faraday Soc.*, 40, 546-551 (1940).
- [7] G. Lu, X.D. Wang, Y.Y. Duan, A critical review of dynamic wetting by complex fluids: from Newtonian fluids to non-Newtonian fluids and nanofluids, *Adv. Colloid Interf. Sci.*, 236, 43-62 (2016).
- [8] T.A. Terhemen; Y.S. Gbaoron, Contact angle hysteresis – Advantages and disadvantages: A critical review, *Rev. Adhes. Adhes.*, 8, 47-67 (2020).
- [9] B. Andreotti, J.H. Snoeijer, Statics and dynamics of soft wetting, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 52, 285-308 (2020).
- [10] N.T. Chamakos, D.G. Sema, A.G. Papathanasiou, Progress in modeling wetting phenomena on structured substrates. *Arch. Comput. Meth. Eng.* (2020).

- [11] P.G. de Gennes, Wetting: statics and dynamics, *Rev. Mod. Phys.*, 57, 827-863 (1985).
- [12] D. Bonn, J. Eggers, J. Indekeu, J. Meunier, E. Rolley, Wetting and spreading, *Rev. Mod. Phys.*, 81, 739-805 (2009).
- [13] C. Huh, L.E. Scriven, Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid/fluid contact line, *J. Colloid Interf. Sci.*, 35, 85-101 (1971).
- [14] M.C.T. Wilson, J.L. Summers, Y.D. Shikhmurzaev, A. Clarke, T.D. Blake, Non-local hydrodynamic influence on the dynamic contact angle: Slip models vs experiment, *Phys. Rev. E*, 73, 041606 (2006).
- [15] L. Robert, Y. Demay, B. Vergnes, Stick-slip flow of high density polyethylene in a transparent slit die investigated by laser Doppler velocimetry, *Rheol. Acta*, 43, 89-98 (2004).
- [16] C. Combeaud, B. Vergnes, A. Merten, D. Hertel, H. Münstedt, Volume defects during extrusion of polystyrene investigated by flow induced birefringence and laser-Doppler velocimetry, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 145, 69-77 (2007).
- [17] H. Yokoi, Part IV: Process visualization, control, optimization, and simulation: Internal visualization of mold cavity and heating cylinder, in *Injection Molding, Technology and Fundamentals*, edited by M.R. Kamal, A. Isayev and S.-J. Liu, Carl Hanser Verlag, Munich, 395-438 (2009).
- [18] P.K. Freakley, W.Y. Wan Idris, Visualization of flow during the processing of rubber in an internal mixer, *Rubber Chem. Tech.*, 52, 134-145 (1979).
- [19] T. Asai, T. Fukui, K. Inoue, M. Kuriyama, Proc. International Rubber Conference Paper III-4, Paris (1983).
- [20] K. Min, J.L. White, Flow visualization of the motions of elastomers and molten plastics in an internal mixer, *Rubber Chem. Tech.*, 58, 1024-1037 (1985).
- [21] J.L. White, K. Min, C.Y. Ma, R. Brzoskowski, Basic studies of flow visualization of processing of elastomers and their compounds: Internal mixer and extrusion, *J. Polym. Eng.*, 6, 79-93 (1986).
- [22] K. Min, Flow visualization parallel and perpendicular to the rotor axes for elastomers and molten plastics in an internal mixer - The influence of rotor design, *Intern. Polym. Proc.*, 1, 179-187 (1987).
- [23] O. Breuer, H. Chen, B. Lin, U. Sundararaj, Simulation and visualization of flow in a new miniature mixer for multiphase polymer systems, *J. Appl. Polym. Sci.*, 97, 136-142 (2005).
- [24] J. Chaiken, R. Chevray, M. Tabor, Q.M. Tan, Experimental study of Lagrangian turbulence in a Stokes flow, *Proc. Roy. Soc. A*, 408, 165-174 (1986).
- [25] K.H. de Haas, D. van den Ende, C. Blom, E.G. Altena, G.J. Beukema, J. Mellema: A counter-rotating Couette apparatus to study deformation of a sub-millimeter sized particle in shear flow. *Rev. Scient. Instr.*, 69, 1391-1397 (1998).
- [26] J.F. Agassant, A. Poitou, R. Valette, A kinematic approach to distributive mixing, in: *Mixing and Compounding of Polymers*, 2nd edition, I. Manas Zloczower (Ed.), Hanser, Munich, 217-240 (2009).
- [27] M. Rabaud, S. Michalland, Y. Couder, Dynamical regimes of directional viscous fingering: Spatiotemporal chaos and wave propagation, *Phys. Rev. Lett.*, 64, 184-189 (1990).
- [28] L. Pan, J.R. de Bruyn, Spatially uniform travelling cellular patterns at a driven interface, *Phys. Rev. E*, 49, 483-493 (1994).
- [29] F. Varela López, L. Paucharda, M. Rosenb, M. Rabaud, Non-Newtonian effects on ribbing instability threshold, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 103, 123-139 (2002).
- [30] P. Thirunavukkasaru, *Analysis of the interfacial flow behavior of polymers along the walls of an internal mixer*. Thèse de doctorat de l'Université PSL, préparée à MINES ParisTech, Sophia Antipolis (2021).

[Abridged English version]

Design of a transparent co- and counter-rotating eccentric Couette cell dedicated to study the interfacial flow behavior of viscous fluids

A prototype was developed to observe the flow behavior of viscous fluids (10^3 to 10^5 Pa.s) under free surface shear. The geometry of the prototype is an eccentric Couette cell where both cylinders can rotate in the same or opposite directions. Transparent windows permit *in situ* observations during flow. The design, development and testing of the prototype with a viscous silicon fluid are reported in this paper. In order to obtain information on contact lines and free surfaces under shear, the flow behaviour in the case of a small fill factor was investigated in co- and counter-rotating conditions. A particular attention was paid to determine steady state flow conditions.



PRIX DE THESE

GROUPE FRANÇAIS DE RHEOLOGIE

Le Groupe Français de Rhéologie décerne annuellement un prix destiné à récompenser des travaux de recherche effectués dans le cadre d'une thèse de doctorat

Montant du Prix : 1 500 Euros

REGLEMENT :

Le prix sera attribué à un candidat ayant soutenu une thèse en France ou en co-tutelle avec la France, soit spécifiquement dans le domaine de la Rhéologie, soit dans un domaine où les outils théoriques et/ou expérimentaux de rhéologie auront été largement utilisés.

Les candidats doivent avoir soutenu leur thèse entre le 1^{er} janvier et le 31 décembre de l'année précédente. Ils devront faire acte de candidature avant le 15 mars de l'année en cours.

Le dossier de candidature sera constitué d'un résumé de trois pages rédigé selon les consignes aux auteurs de la revue *Rhéologie*, de la copie des rapports de thèse et de soutenance, d'un curriculum vitae et de deux exemplaires de la thèse. Tous ces documents seront envoyés par voie électronique sauf les deux exemplaires de thèse qui seront transmis par voie postale.

REMISE DU PRIX :

Le lauréat s'engage à faire une communication orale lors du colloque annuel du GFR durant lequel il recevra son prix de thèse. Le jury est composé de spécialistes du secteur de la recherche académique ou industrielle.

Les dossiers de candidatures devront être adressés à :

Alain Ponton – Matière et Systèmes Complexes
alain.ponton@univ-paris-diderot.fr
UMR CNRS et Université Paris Diderot-Paris 7
Bâtiment Condorcet – Case 7056
75205 Paris Cedex 13



BOURSE de CONGRES

GROUPE FRANCAIS DE RHEOLOGIE

Le Groupe Français de Rhéologie offre des bourses destinées à faciliter la participation de jeunes chercheurs souhaitant présenter une communication à des congrès internationaux dans le domaine de la Rhéologie. Dans la limite des frais réels, cette bourse pourra être de

750 €

CANDIDATURE

La bourse sera attribuée à un jeune chercheur, membre du GFR, doctorant ou post-doctorant dans une université ou un centre de recherches public, en France ou dans un pays en émergence.

La candidature devra être accompagnée d'un CV, du résumé soumis au congrès et d'une lettre de motivation soulignant la pertinence du congrès vis-à-vis des recherches du demandeur. Le candidat pourra joindre toute lettre de recommandation utile à l'appui de son dossier.

La candidature sera transmise avant le 1^{er} mars, le 1^{er} mai ou le 1^{er} novembre, la commission d'examen se réunissant pour étudier les demandes en cours trois fois par an, en mars, mai et novembre. Les dossiers de candidatures devront être adressés à :

Secrétaire Général du GFR- Elisabeth Lemaire

InPhyNi, UMR 7010

Université Nice-Sophia Antipolis, Parc Valrose, 06108, Nice Cedex 2

VERSEMENT de la BOURSE

Les lauréats recevront leur bourse dès que leur participation au congrès sera assurée et sous réserve que les engagements pris aient été tenus. Notamment, et au plus tard trois mois après la clôture du congrès, les lauréats devront avoir soumis un article dans la revue Rhéologie et un compte rendu d'une page sur ce que le congrès leur a apporté sur le splan scientifique, professionnel, humain... Ce témoignage pourra être publié dans la revue Rhéologie ainsi que sur le site web du GFR.

Plus d'infos : www.legfr.org

Consignes aux auteurs de *Rhéologie* (18 pts, après: 10)

P. Coussot et J.L. Grossiord (12 pts, après : 6)

Groupe Français de Rhéologie (10 pts Italiques, après : 30)

Résumé : Les auteurs sont invités à respecter les consignes décrites ci-après qui, compte tenu du mode d'édition actuel de la revue *Rhéologie*, faciliteront le processus éditorial. (10 pts, après : 10)

Mots-clé : Rhéologie, consignes, auteurs (10 pts, après : 10)

[Abridged English version on last page]
(mention à conserver, Arial Narrow, 12 pts)

1. Introduction (12 points, après : 8)

Les auteurs sont encouragés à limiter la longueur de leurs articles à une dizaine de pages de texte, figures incluses, selon le format détaillé ci-dessous. Cependant la longueur des articles de synthèse n'est pas limitée. Le texte comprend un résumé court en français (500 caractères maximum) suivi du texte principal, la dernière page étant constituée d'une version abrégée en anglais. Les articles en anglais sont organisés de la même manière, avec une version abrégée en français en dernière page.(après : 6)

2. Organisation (avant : 10 ; après : 8)

Le texte principal comporte une introduction, plusieurs paragraphes et une conclusion, suivie éventuellement de remerciements, puis la liste des références bibliographiques. La version abrégée (anglais ou français) en fin de texte comporte au moins un titre, un résumé et fait référence à l'ensemble des figures et références bibliographiques du texte principal, dans un format analogue. Les paragraphes, introduction incluse, ainsi que les sous-parties éventuelles, sont numérotées dans l'ordre, sous la forme 1., 1.1, 1.2, etc. Les équations sont numérotées et alignées à gauche :

$$\frac{d\lambda}{dt} = \dot{\lambda} + \frac{\partial h}{\partial x} \dot{\gamma}^2 \quad (\text{après : 6}) \quad (1)$$

Les légendes des figures sont en Times New Roman 10. Pour une bonne qualité de reproduction les photos ou dessins doivent être fournis sous forme papier aux dimensions prévues pour une intégration directe dans le texte (l'espace correspondant doit être laissé libre). Les références sont numérotées et citées (entre crochets) dans le texte par ordre d'apparition. Le format des principaux types de références est le suivant :

[1] John, P. Rheology for the rich. *J. Rheol.*, 12, 153-189 (2002).

[2] John, P.K. *Rheology for the poor*. (EDP Sciences, Paris, 2003).

[3] Jean, J. *Rhéologie pour tous les autres*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, Bordeaux, France (2004).

3. Style (avant : 10 ; après : 8)

3.1 Divers (12 points, après : 6)

L'ensemble du document est contenu dans un espace de 17 cm de large sur 25,7 cm (retraits de 2 cm de chaque côté). Le début de l'article (titre, auteurs, résumés) est contenu dans une colonne de 17 cm de large. Le reste du texte (sauf la version abrégée) est affiché sur deux colonnes de 8,25 cm de large séparées de 0,5 cm. Mis à part le titre ainsi que les noms et adresses des auteurs qui sont centrés, l'ensemble du texte est justifié. Seuls les titres des paragraphes principaux sont en gras.

3.2 Autres (avant : 6 ; après : 6)

Les figures ou photos sont insérées dans le texte sous forme d'images, impérativement avec une définition de 300 dpi, et de préférence supérieure.

Sauf mention spéciale (entre parenthèses) pour certains titres et paragraphes spéciaux, les caractères du texte sont en Times New Roman 11 points. Les lignes de texte au sein d'un paragraphe sont séparées par un interligne simple. L'espacement "avant" les paragraphes est de zéro sauf mention spéciale. Les espacements "après" sont mentionnés entre parenthèses dans ce modèle.

Une feuille de style sera à terme disponible sur le site web du GFR. Après acceptation par le comité éditorial, il est demandé à l'auteur de fournir le texte final de préférence sous forme électronique. Aucune épreuve ni tiré-à-part ne seront envoyés aux auteurs.

