

DISS. ETH NO: 22472

From Tribology to Rheology
**Impact of interparticle friction in the shear
thickening of non-Brownian suspensions**

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH ZURICH)

presented by

Nicolas FERNANDEZ

Ingénieur de l'École Polytechnique
born on 02.07.1986
citizen of France

accepted on the recommendation of

PROF. DR. NICHOLAS D. SPENCER	Examiner
HDR DR. JULIETTE CAYER-BARRIOZ	Co-examiner
PROF. DR. ROBERT FLATT	Co-examiner
PROF. DR. LUCIO ISA	Co-examiner
PROF. DR. WALTER STEURER	Co-examiner

2014

Abstract

Recently, new cement pastes with low carbon footprint, low water content and outstanding mechanical properties after hardening have been developed. However, these cement pastes cannot be commercialized because they shear thicken at high shear rates, causing severe processing problems. **The shear thickening of non-Brownian suspensions such as these cement slurries is to date poorly understood.**

In this thesis, a **theoretical framework** has therefore been developed to predict and understand the shear thickening of dense non-Brownian suspensions. It links the macroscopic transition from Newtonian to shear-thickening regimes to the microscopic transition in lubrication regimes between the particles from hydrodynamic to boundary lubrication. It also shows that the suspension volume fraction and the boundary-lubrication friction coefficient control the nature (continuous or discontinuous) of the shear-thickening regime.

This model is first validated by **computer simulations** based on a tailored contact dynamics algorithm. The simulated flow curves not only exhibit the three different flow regimes described in the literature, but also display the transitions between the regimes in a realistic way.

The relevance of the framework is then **experimentally confirmed on suspensions of quartz particles** coated with different polymer brushes that modify the boundary-lubrication friction coefficient between the particles. These experiments validate the link between the nature of shear thickening, the suspension volume fraction and the boundary friction coefficient. Moreover, based on extensive tests, the influence of different polymer architectural parameters on the shear thickening of different filler suspensions is evaluated.

Finally, emphasizing the key role of the friction between particles in the rheology of dense suspensions, a **precise and robust technique to measure the friction between two microspheres** based on lateral force microscopy (LFM) has been developed and successfully applied.

Résumé

De nouvelles pâtes de ciment contenant très peu d'eau ont récemment été développées pour leurs excellentes propriétés mécaniques à l'état durci et leur faible empreinte carbone. Néanmoins, ces pâtes rhéoépaississent à haut taux de cisaillement. Or **le rhéoépaississement est un phénomène mal compris, en particulier en ce qu'il concerne les suspensions non-Browniennes comme les pâtes de ciment.**

Cette thèse expose, en premier lieu, un **nouveau cadre théorique** pour décrire et comprendre le rhéoépaississement des suspensions non-Browniennes. Il montre que la transition entre le régime Newtonien et le régime rhéoépaississant s'accompagne d'un changement du régime de lubrification dominant dans les contacts entre grains, d'une lubrification hydrodynamique vers une lubrification limite. Il souligne aussi que la fraction volumique et le coefficient de friction en régime limite des grains détermine la nature, continue ou discontinue, de ce rhéoépaississement.

Ce modèle est d'abord validé par le biais de **simulations informatiques** basée sur un algorithme de Contact Dynamics modifié. Ces simulations reproduisent, de manière réaliste, à la fois les trois différents régimes d'écoulement des suspensions denses décrits dans la littérature mais aussi les transitions de l'un à l'autre.

La pertinence de ce modèle est ensuite **validée expérimentalement sur des suspensions de grains de quartz** dont le coefficient de frottement en régime limite a été modifié par adsorption de brosses de polymère à leur surface. Ces expériences confirment le lien étroit entre la nature du rhéoépaississement d'une part et la fraction volumique et le coefficient de frottement en régime limite d'autre part. Des tests sur de nombreux polymères ont, par ailleurs, permis d'analyser les paramètres de leur architecture qui influencent leur capacité à réduire le rhéoépaississement de différentes pâtes de fillers.

Enfin, prenant acte du rôle-clé du frottement entre grains dans la rhéologie des suspensions concentrées, une **nouvelle technique, simple et robuste pour mesurer le frottement entre deux microphères**, dérivée de la Lateral Force Microscopy, a été développée.