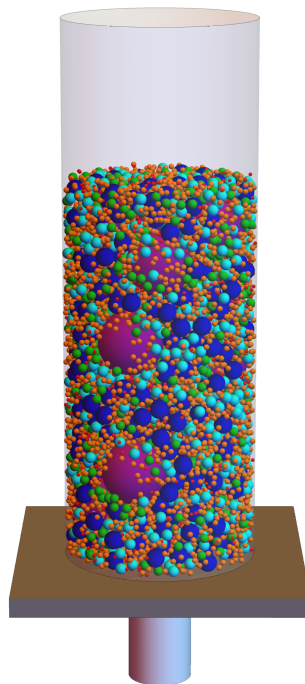




FACULTÉ DES SCIENCES
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

Mélanges et compaction d'assemblages granulaires



Dissertation présentée par
Salvatore Pillitteri
en vue de l'obtention du grade de Docteur en Sciences.
Année académique 2021-2022.

Remerciements

Après quatre années de thèse, je dépose finalement le fruit de mon travail. Je souhaite commencer cet ouvrage par des remerciements envers toutes les personnes qui m'ont soutenu lors de sa réalisation.

Je remercie messieurs Alejandro Silhanek, Farhang Radjai, Sébastien Kiesgen de Richter, Geoffroy Lumay, Éric Opsomer et Nicolas Vandewalle pour leur lecture et leur participation à ce jury.

Je tiens à remercier vivement mon promoteur Nicolas Vandewalle qui m'a permis d'évoluer et de me surpasser pendant ces quatre années. Je souhaite également le remercier pour ses conseils et son exceptionnelle disponibilité. Je pense sincèrement qu'il n'a pas d'équivalent.

Je remercie l'ensemble de mes collègues, ceux d'hier comme d'aujourd'hui, pour leur aide et l'ambiance si caractéristique du GRASP. Un grand merci à l'équipe des techniciens : sans vous, pas d'expérience. Pas d'expérience, pas de thèse, Pas de thèse... et bien pas de thèse !

Je remercie Charlotte pour son aide précieuse. Grâce à elle, j'ai eu la chance de me défaire des soucis administratifs, qui sont rarement la partie amusante du travail. Merci pour les relectures d'articles et la correction de l'anglais. Merci également à Michaël pour son aide au laboratoire Aptis. Il m'a aidé à collecter une grande quantité de données.

Un tout grand merci à mes amis, pour leur soutien, même si je n'ai pas été très disponible en cette dernière année. Vous êtes toujours là, pour moi, dans les moments difficiles. Merci pour l'aide dans la correction de cette thèse.

Merci à l'équipe PowderReg, pour cette belle aventure. Je remercie plus particulièrement Arthur Pascot et Sébastien Kiesgen de Richter pour les séjours à Nancy, rendus tout à la fois enrichissants et amusants.

Je remercie ma famille pour son indéfectible soutien. Je souhaite plus particulièrement remercier ma chère soeur, Maryline, pour son amour infini qui me porte, mon beau-frère Shervin pour les parties de rigolade sans fin, ma mère et mon père pour leur soutien, leur amour et l'éducation qu'il m'ont donnée sans lesquels je ne serais, probablement, jamais allé aussi loin dans ma vie.

Pour terminer, je souhaite remercier ma tendre fiancée Daphné, qui a été à mes côtés pendant tout ce temps, m'a réconforté et rassuré pendant les moments difficiles. Tu es

l'amour de ma vie, mon kê !

Résumé

Un empilement de grains soumis à une vibration ou à une série de secousses voit sa compacité η augmenter. Ce phénomène, appelé compaction, peut être utilisé pour densifier les matériaux granulaires ou comme une méthode de mesure pour caractériser les propriétés d'écoulement d'une poudre. Cette méthode est d'ailleurs populaire dans l'industrie pharmaceutique en raison de sa facilité d'utilisation. Bien que le phénomène de compaction soit étudié depuis un certain temps, il reste actuellement mal compris et les modèles disponibles pour décrire sa dynamique sont, pour la plupart, empiriques.

Ce travail se concentre sur le phénomène de compaction et la manière dont certains paramètres, comme les conditions de vibration et la granulométrie du milieu granulaire, peuvent impacter la dynamique de ce processus. Cette thèse se présente sous la forme d'une collection d'articles, liés entre eux par la recherche de paramètres de contrôle et de l'optimisation du processus. Après un chapitre d'introduction suivi d'un chapitre sur l'état de l'art, ces articles scientifiques se répartissent dans les chapitres 3 à 6.

Le Chapitre 3 présente une étude menée sur l'impact des conditions de vibration sur la dynamique de compaction. Un système monodisperse, c'est-à-dire constitué de particules de la même taille, a été utilisé afin de montrer que l'amplitude $\Delta\eta$ et la vitesse initiale de compaction μ_0 dépendent linéairement de la vitesse d'oscillation $A\omega$. En outre, le rapport d'aspect L/D de la pile granulaire influence les résultats.

Le Chapitre 4 aborde les mélanges granulaires en commençant par les systèmes bidisperses, c'est-à-dire constitués de deux tailles de particules. Les paramètres de contrôle tels que le rapport de tailles α entre particules et la composition du mélange sont mis en évidence. Un modèle pour prédire la compacité η en fonction de ces paramètres est développé, en tenant compte de la ségrégation granulaire. De plus, une divergence du temps typique de compaction τ est observée en fonction du rapport de tailles α .

Le Chapitre 5 étudie les mélanges tridisperses. La compacité asymptotique η_∞ et le temps typique de compaction τ sont analysés en fonction de la composition du mélange. Le modèle de compacité développé pour les systèmes bidisperses est élargi à ces systèmes tridisperses et une approche pour modéliser τ est proposée.

Le Chapitre 6 généralise le modèle de compacité aux mélanges polydisperses. L'impact de la composition du mélange, du rapport de tailles entre particules et de la ségrégation y sont discutés. L'optimum de compacité η_{max} est obtenu en utilisant une distribution granulaire proche de celle proposée par Andreasen, actuellement utilisée pour créer des matériaux de construction.

Ces résultats ouvrent de nouvelles perspectives pour la compréhension et la modélisation du processus de compaction des mélanges granulaires. Ils seront intégrés dans la réalisation d'un nouvel instrument de mesure développé dans le cadre du projet "PowderReg", financé par le programme Européen Interreg VA GR dans l'axe prioritaire 4 "Renforcer la compétitivité et l'attractivité de la Grande Région/Großregion".

Abstract

A granular pile submitted to a vibration or a series of shakes increases its packing fraction η . This phenomenon, called compaction, can be used to densify granular materials or as a measurement method to characterize the flow properties of a powder. This method is also popular in the pharmaceutical industry because of its ease of use. Although the phenomenon of compaction has been studied for a long time, it remains poorly understood and most of models describing its dynamics are empirical.

This work focuses on compaction and the impact of parameters like the conditions of vibration and the granulometry of the granular medium on the dynamics of this phenomenon. This thesis is presented as a collection of articles, linked together by the search for control parameters and the process optimization. After an introductory chapter followed by a chapter on the state of the art, these scientific articles are distributed among chapters 3 to 6.

Chapter 3 presents a study on the impact of vibration conditions on compaction dynamics. A monodisperse system, i.e. made of particles of the same size, has been used in order to show that the amplitude $\Delta\eta$ and the initial speed of compaction μ_0 linearly depend on the oscillation speed $A\omega$. In addition, the aspect ratio L/D of the granular pile influences the results.

Chapter 4 discusses granular mixtures starting with binary systems, consisting of two particle sizes. Control parameters such as the size ratio α between particles and the composition of the mixture are highlighted. A model to predict the packing fraction η as a function of these parameters is developed, taking into account the granular segregation. Moreover, a diverging behaviour of the typical compaction time τ is observed as a function of the size ratio α .

Chapter 5 presents ternary mixtures. The asymptotic packing fraction η_∞ and the typical compaction time τ are analyzed as a function of the mixture composition. The packing fraction model developed for binary systems is extended to ternary systems and an approach to model τ is proposed.

Chapter 6 adapts the packing fraction model to polydisperse mixtures. The impact of the composition of the mixture, the size ratio between particles and the segregation are discussed. The optimum packing fraction η_{max} is obtained by using a granular distribution close to that proposed by Andreasen, currently used to create building materials.

These results open up new perspectives for understanding and modeling the compaction process of granular mixtures. They will be integrated into the realization of a new measuring instrument developed within the framework of the "PowderReg" project, funded by the European program Interreg VA GR within the priority axis 4 "Strengthen the competitiveness and the attractiveness of the Grande Région/Großregion".

Liste des publications

Les articles colorés en bleu ci-dessous sont repris intégralement dans cette thèse.

Articles publiés

1. G. Grosjean, M. Hubert, Y. Collard, S. Pillitteri and N. Vandewalle, *Surface swimmers, harnessing the interface to self-propel*, EPJ E **41**, 1-10 (2018).
2. G. Lumay, S. Pillitteri, M. Marck, F. Monsuur, T. Pauly, Q. Ribeyre, F. Francquic and Vandewalle, *Influence of mesoporous silica on powder flow and electrostatic properties on short and long term*, J. Drug Deliv. Sci. Technol. **53**, 101192 (2019).
3. S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *From jamming to fast compaction dynamics in granular binary mixtures*, Sci. Rep. **9**, 1-7 (2019).
4. S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *How size ratio and segregation affect the packing of binary granular mixtures*, Soft Matter **16**, 9094-9100 (2020).
5. S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Forced segregation in binary granular mixtures*, EPJ Web of Conferences **249**, 02001 (2021).
6. S. Enferad, S. Pillitteri, G. Lumay, C. Gaiani, K. S. De Richter, M. Marck, S. Umbetov, N. Vandewalle and M. Jenny, *Powder flow behavior governed by the surface properties of glass beads*, Powder Technol. **388**, 425-433 (2021).
7. M. Noirhomme, A. Cazaubiel, E. Falcon, D. Fischer, Y. Garrabos, C. Lecoutre-Chabot, S. Mawet, E. Opsomer, F. Palencia, S. Pillitteri and N. Vandewalle, *Particle Dynamics at the Onset of the Granular Gas-Liquid Transition*, Phys. Rev. Lett. **126**, 128002 (2021).
8. N. A. Pike, A. Dewandre, F. Chaltin, L. G. Gonzalez, S. Pillitteri, T. Ratz and M. J. Verstraete, *Spontaneous interlayer compression in commensurately stacked van der Waals heterostructures*, Phys. Rev. B **103**, 235307 (2021).

Articles en préparation

1. S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Compaction dynamics under vertical or horizontal vibration*, preprint.
2. S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Ternary granular mixtures : optimal compositions for packing and flow properties*, soumis pour publication dans Physical Review E.
3. S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Optimal packing fraction of polydisperse mixtures*, soumis pour publication dans Powder Technology.

Table des matières

1	Introduction	13
1.1	Matériaux granulaires	13
1.2	Interactions entre grains	13
1.2.1	Contact de Hertz	14
1.2.2	Forces de frottement	15
1.2.3	Charges électriques	16
1.2.4	Forces d'adhésion	17
1.2.5	Forces capillaires	18
1.3	Propriétés particulières	18
1.3.1	Chaînes de forces	19
1.3.2	Ségrégation granulaire	20
1.3.3	Dilatance	21
1.4	Compaction d'empilements granulaires	22
1.5	Objectif de la thèse	24
2	État de l'art	27
2.1	Dynamique de compaction	27
2.2	Influence des conditions de vibration	29
2.3	Influence de la polydispersité	31
2.4	Influence de la cohésion	33
2.5	Résumé	34
3	Systèmes monodisperses	35
3.1	Problématique	35
3.2	Expérience	35
3.3	Résultats principaux	36
3.4	Résumé	38
4	Systèmes bidisperses	45
4.1	Problématique	45
4.2	Expérience	45
4.3	Résultats principaux	47
4.4	Modélisation de mélanges	48
4.5	Résumé	50

5	Systèmes tridisperses	67
5.1	Problématique	67
5.2	Expérience	67
5.3	Résultats principaux	68
5.4	Résumé	69
6	Systèmes polydisperses	81
6.1	Problématique	81
6.2	Modèle	81
6.3	Résultats principaux	82
6.4	Résumé	84
7	Conclusion et perspectives	93

Chapitre 1

Introduction

1.1 Matériaux granulaires

Les matériaux granulaires sont des milieux constitués d'un très grand nombre de particules solides dénombrables, appelées grains, insensibles aux fluctuations thermiques [1]. On considère généralement des particules dont le diamètre est supérieur à $1\ \mu\text{m}$. La nature chimique de ces grains, ainsi que leurs tailles et leurs formes peuvent être très variées comme l'illustre la Figure 1.1. Suivant une classification proposée par Brown et Richards [2,3], trois catégories sont à différencier. La première concerne les poudres, constituées de particules comprises entre $1\ \mu\text{m}$ et $100\ \mu\text{m}$, très sensibles à la cohésion. Dans la seconde, sont repris les grains pour la tranche de $100\ \mu\text{m}$ à $3\ \text{mm}$, faiblement sensibles à la cohésion. La troisième reprend les solides brisés pour des particules au delà de $3\ \text{mm}$. Dans cette dernière catégorie, ce sont essentiellement les forces de contact et la gravité qui dominent. La cohésion reprend différents types de forces que nous détaillons plus loin. De nombreux objets du quotidien se retrouvent dans cette définition, comme l'illustre la Figure 1.1. Dans l'agroalimentaire, on peut citer les céréales, les grains de café et le sucre. Dans le secteur de la construction comme en géologie, on rencontre souvent le sable. Dans l'industrie pharmaceutique, la poudre de lactose est largement utilisée pour la fabrication de gélules et de comprimés. Même en astrophysique, les champs d'astéroïdes et les anneaux planétaires peuvent être considérés comme des matériaux granulaires. Tous ces exemples illustrent l'omniprésence de ces matériaux dans la nature.

L'enjeu majeur pour ce type de matière est de pouvoir définir les lois physiques décrivant leur dynamique et leur statique. La rhéologie des matériaux granulaires est, en effet, complexe à modéliser. Pour pouvoir décrire les milieux granulaires, il faudrait être capable de relier des grandeurs physiques mesurées macroscopiquement à celles mesurées à l'échelle des grains [4]. Cependant, la plupart des mesures exécutées actuellement sur les matériaux granulaires sont réalisées à l'échelle macroscopique. La nature et l'amplitude des forces s'appliquant entre les grains sont donc rarement connues. Pourtant, les caractérisations et les modélisations de ces matériaux sont primordiales dans de nombreux domaines.

1.2 Interactions entre grains

Pour bien comprendre la complexité des comportements des matériaux granulaires, il est indispensable de lister différentes interactions qui peuvent exister entre les grains. En effet, ce sont elles qui, à l'échelle des grains, sont responsables du comportement macroscopique



FIGURE 1.1 – Large variété de milieux granulaires allant de 1 μm , pour les poudres les plus fines, à plusieurs kilomètres de diamètre pour les astres. La forme et la nature chimique des particules constituant les matériaux granulaires sont tout aussi variées que leur taille. Image issue de [4].

du matériau.

1.2.1 Contact de Hertz

Lorsque deux grains se touchent, ils subissent une force normale due à la déformation au point de contact. Le modèle le plus connu pour décrire cette force est le contact de Hertz. Dans le cas de deux sphères, le contact est symbolisé par la profondeur d'interpénétration 2δ , comme illustré sur la Figure 1.2. Cette déformation va produire une force non-linéaire qui s'écrit [5]

$$F_N = \frac{E\sqrt{2R}}{3(1-\nu_p^2)}\delta^{3/2}, \quad (1.1)$$

où E est le module de Young et ν_p^2 le coefficient de Poisson du matériau constituant les grains. Ce modèle n'est valable que pour des particules sphériques. Les grains de formes différentes gardent néanmoins une loi similaire $F_N \sim E\sqrt{R}\delta^{3/2}$. L'expression exacte est difficile à généraliser et dépend fortement de la forme des grains [6]. Cette approche ne tient pas compte des éventuelles déformations plastiques. Effectivement, il n'est pas rare de rencontrer des poudres dont les grains sont suffisamment plastiques pour être déformés de manière irréversible par la contrainte appliquée. Le lactose est typiquement un matériau granulaire dont les grains subissent aisément des déformations plastiques. C'est d'ailleurs

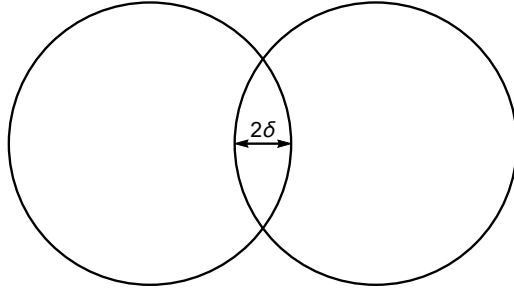


FIGURE 1.2 – Schéma de l'interpénétration entre deux particules sphériques. La profondeur d'interpénétration se note 2δ .

cette plasticité qui permet de produire les comprimés. Si la contrainte est assez forte, on peut même observer des fractures [7].

1.2.2 Forces de frottement

Lorsqu'une force normale F_N résulte d'un contact, il existe une force de frottement F_t qui va s'appliquer tangentiellement sur le grain, comme illustré sur la Figure 1.3 (a). L'approche la plus simple consiste à utiliser les lois d'Amontons-Coulomb [8]. Même si elles sont empiriques et dédiées aux phénomènes macroscopiques, elles restent valables dans la plupart des cas avec des matériaux granulaires. Lorsque le solide est au repos, la force de frottement est majorée par la normale F_N et le coefficient de frottement statique μ_s , tel que

$$|F_f| \leq \mu_s |F_N|. \quad (1.2)$$

L'indétermination de F_f n'est levée qu'avec la résolution de l'équilibre des forces. Cependant, le grand nombre de particules, et de contacts qui en résultent, mène souvent à un nombre d'inconnues supérieur au nombre d'équations. Cette indétermination des forces de friction illustre bien la complexité des milieux granulaires.

Lorsque la résultante des forces externes est suffisante pour dépasser la borne supérieure de friction statique, le grain se met en mouvement et applique, dans ce cas, la loi de friction dynamique

$$|F_f| = \mu_d |F_N|, \quad (1.3)$$

où μ_d est le coefficient de friction dynamique.

Notons néanmoins que même en l'absence de force de frottement dynamique, c'est-à-dire $\mu_d = 0$, on peut toujours observer une contrainte dans le matériau granulaire s'opposant au cisaillement [9]. En effet, en supposant que la force tangentielle F_t nécessaire pour faire glisser une bille par dessus deux autres peut être obtenue par un problème de plan incliné, comme schématisé sur la Figure 1.3 (b), on définit P comme le poids de la bille à faire glisser et θ l'angle formé par le plan incliné équivalent, et on a

$$F_t = \tan(\varphi_d + \theta)P, \quad (1.4)$$

où on pose que $\mu_d = \tan(\varphi_d)$. Il est visible que même si la friction μ_d entre grains s'annule, la force nécessaire pour déloger un grain n'est pas nulle. À la contrainte provenant de la force de frottement entre grains s'ajoute une contrainte d'origine géométrique qui reste toujours présente.

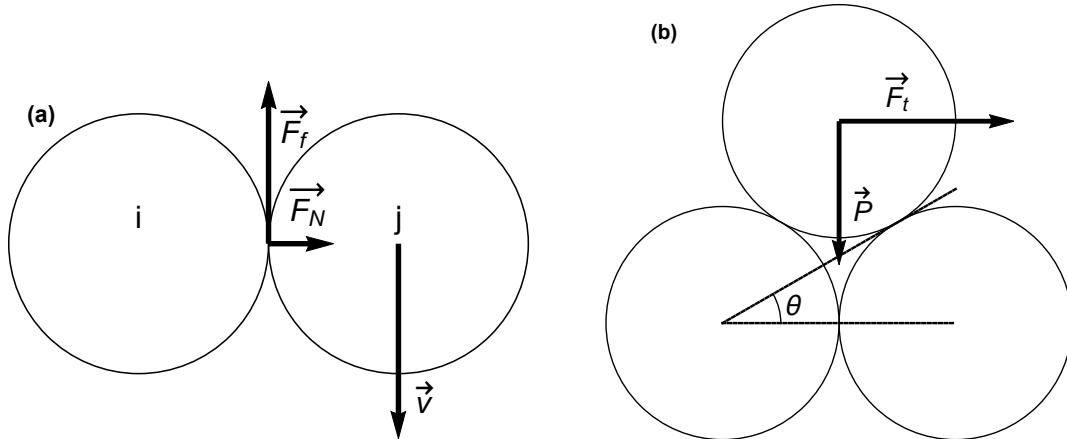


FIGURE 1.3 – (a) Bilan des forces s’appliquant sur la particule j dues au contact avec la particule i . La vitesse \vec{v} de j par rapport à i est de sens inverse à la force de frottement \vec{F}_f . Au repos, lorsque $\vec{v} = \vec{0}$, c’est le coefficient de frottement statique μ_s qui est d’application. Dans le cas contraire, on doit utiliser le coefficient de frottement dynamique μ_d . (b) Modèle à trois billes pour déterminer le coefficient de friction d’origine géométrique. Le plan incliné équivalent est déterminé par l’horizontale et le point de contact avec la bille faisant obstacle à celle du dessus, décrivant un angle θ .

1.2.3 Charges électriques

La force qui s’applique entre deux charges ponctuelles est décrite par la loi de Coulomb

$$F_e = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q_1 q_2}{r^2}, \quad (1.5)$$

où ϵ est la constante diélectrique. Cette force décroît rapidement avec la distance r et est attractive, $F_e < 0$, ou répulsive, $F_e > 0$, suivant le signe des deux charges considérées q_1 et q_2 . Cette force est d’une grande importance car elle est souvent présente entre les grains. Il n’est pas rare d’observer une poudre se charger après une manipulation [10, 11]. De fait, lors d’un écoulement, les particules peuvent se charger par effet triboélectrique car elles se frottent entre elles ou avec les parois [12–14]. La difficulté pour évaluer l’amplitude de cette force dans le milieu granulaire provient de la distribution des ces charges entre les grains. À l’heure actuelle, il est difficile de prédire la manière dont les grains vont se charger [15, 16].



FIGURE 1.4 – On pourrait imaginer que chaque particule se charge soit positivement, soit négativement [16, 17]. Toutefois, il est également possible que chaque grain se compose d’un ensemble de charges différentes, elles-mêmes réparties sur sa surface. Des études récentes montrent que cette dernière supposition donne de bons résultats pour modéliser les interactions d’origine électrique [15].

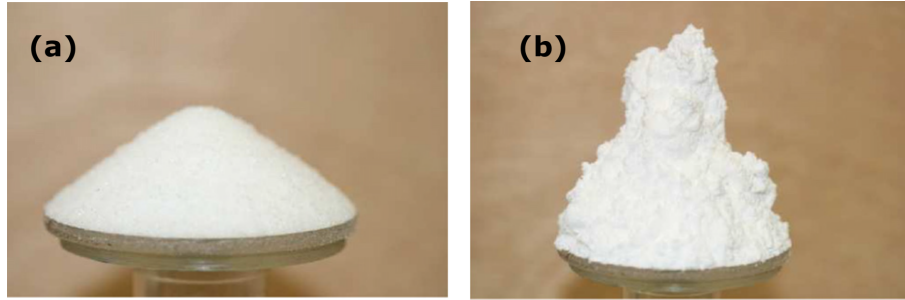


FIGURE 1.5 – (a) Sucre grossier faisant un tas dont l’angle de talus est faible. (b) Sucre impalpable produisant un tas dont l’angle de talus est grand. Les deux tas sont réalisés avec le même type de sucre. Seule la taille des grains change. Lorsque les grains sont suffisamment petits, leur poids peut facilement être dominé par d’autres forces attractives, d’origine électrostatique ou des forces d’adhésion. C’est la raison pour laquelle le sucre impalpable est plus cohésif. Images issues de [18].

La Figure 1.4 montre deux scénarii possibles. La force totale s’appliquant entre les deux grains est très différente suivant la distribution des charges à la surface.

Lorsque les grains sont suffisamment petits, les forces électrostatiques peuvent influencer les propriétés d’une poudre. La Figure 1.5 représente deux types de sucre : un sucre grossier et un sucre impalpable avec de plus petits grains. Comme les forces électrostatiques dominent dans le sucre fin, au contraire du sucre grossier, on observe une hauteur de talus plus élevée dans le premier.

L’effet triboélectrique peut également être responsable d’accidents pendant la manipulation de poudres. Certaines sont inflammables et l’accumulation de charges peut générer de petits arcs électriques, suffisants pour initier une combustion [19].

1.2.4 Forces d’adhésion

Les forces d’adhésion sont des forces attractives de courte portée. Elles proviennent des forces qui s’appliquent entre les atomes des surfaces en contact. Elles regroupent divers types d’interactions : force de van der Waals, forces électrostatiques et interaction entre dipôles [20, 21]. Ces forces sont d’origine électrique, même si chaque grain a une charge globalement nulle. La formulation détaillée de ces forces est assez complexe. Cependant, la force d’adhésion F_{adh} qui s’applique entre deux grains en contact est comprise entre deux bornes [4] :

$$\frac{3}{2}\pi\gamma_s R < F_{\text{adh}} < 2\pi\gamma_s R. \quad (1.6)$$

Ce résultat est obtenu avec des surfaces lisses. Pourtant, ce n’est pas toujours le cas pour les particules de certains matériaux granulaires. Dans le cas plus réaliste de surfaces rugueuses, ce résultat change. Toutefois, la force d’adhésion F_{adh} reste proportionnelle à la tension superficielle solide-solide γ_s et fait toujours intervenir le rayon des particules R . Comme pour les charges électrostatiques, les forces d’adhésion peuvent être la cause de certaines propriétés de la poudre, comme illustré dans la Figure 1.5.

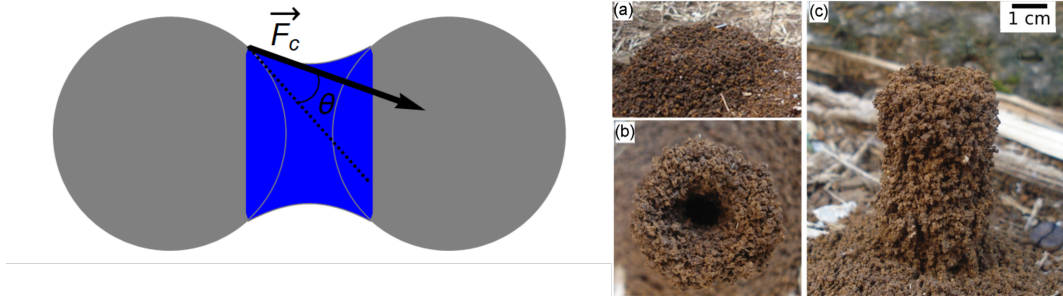


FIGURE 1.6 – (gauche) Adhésion de deux sphères via un pont capillaire. La force capillaire \vec{F}_c forme un angle de contact θ avec la tangente à la surface, représentée par des pointillés. (droite) Tour de terre formée par des fourmis. Image issue de [28].

1.2.5 Forces capillaires

Lorsqu’une faible quantité de liquide s’insère entre les particules d’un milieu granulaire, on peut observer une rapide augmentation de la cohésion du matériau [22–24]. L’eau a tendance à créer des ponts capillaires entre les grains, chacun générant une force d’attraction capillaire [25, 26]

$$F_c \sim \pi \gamma_{sl} R \cos \theta, \quad (1.7)$$

avec θ l’angle de mouillage comme illustré sur la Figure 1.6 et γ_{sl} la tension superficielle solide-liquide.

L’humidité de l’environnement joue un rôle clé dans les matériaux granulaires. En effet, suivant le taux d’humidité environnant, l’eau peut nucléer plus ou moins rapidement entre les aspérités des grains et la quantité de liquide dans le milieu sera plus ou moins importante. Lorsqu’il y a très peu d’eau dans le milieu granulaire, la quantité de liquide n’est pas suffisante pour remplir complètement les aspérités à la surface de contact et créer un ménisque d’eau. Il se forme alors des micro-ponts capillaires [27]. À mesure que la quantité d’eau augmente dans le milieu, la quantité de micro-ponts augmente jusqu’à saturer les aspérités en eau et ainsi créer un ménisque.

Ce sont d’ailleurs les forces capillaires entre les grains qui permettent de générer certaines structures relativement solides, comme les châteaux de sable, avec comme ingrédients uniques des grains et un peu d’eau. La Figure 1.6 donne également un second exemple avec une tour de terre élevée par des fourmis [28].

1.3 Propriétés particulières

Les matériaux granulaires forment un domaine d’étude particulier. Suivant les contraintes appliquées, un même matériau granulaire se comportera soit comme un solide, soit comme un liquide ou encore comme un gaz. Ces trois phases peuvent même coexister [29] comme illustré sur la Figure 1.7. Afin d’étudier un matériau granulaire et de le modéliser, il convient de déterminer dans quel régime il se situe. Trois cas se distinguent pour la rhéologie des milieux granulaires : le cas statique, le cas quasi-statique et le cas dynamique, comme illustrés dans la Figure 1.7. Le premier correspond à l’état solide, pour lequel on s’intéresse essentiellement aux états d’équilibre et à la distribution des forces dans le système. Le cas dynamique

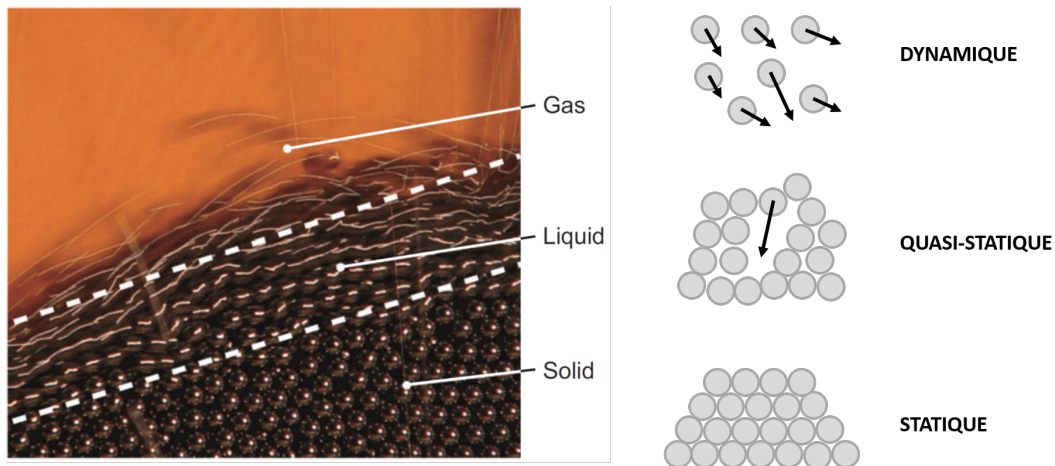


FIGURE 1.7 – (gauche) Écoulement d'un matériaux granulaire composé de billes de métal où coexistent trois phases. D'abord, la phase gazeuse sur la partie supérieure où les billes rebondissent et ont donc un libre parcours moyen bien supérieur à un diamètre de bille. Ensuite la phase liquide sur les premières couches d'écoulement où les billes glissent les unes sur les autres. Enfin, la phase solide vers le bas, où le cisaillement n'est pas suffisant pour faire bouger les billes. Image issue de [30]. (droite) Les trois régimes dynamiques possibles pour un ensemble de grains : statique, quasi-statique et dynamique.

correspond aux états liquides et gazeux. C'est dans ces conditions que la rhéologie du matériau et la distribution des vitesses sont étudiées. Le cas quasi-statique est, quant à lui, un peu à part. Les particules sont supposées pouvoir bouger, mais une à une sur l'échelle de temps d'une sollicitation. On a une succession d'états d'équilibre. Nous présentons *infra* un petit échantillon de phénomènes observés avec des matériaux granulaires qui illustrent chacun de ces cas.

1.3.1 Chaînes de forces

Dans les matériaux granulaires statiques, on observe la formation de chaînes de forces qui tendent à distribuer de manière hétérogène les contraintes dans le milieu. Il est possible de visualiser ces chaînes en utilisant l'effet photoélastique. La Figure 1.8 présente une expérience réalisée avec cet effet. Des grains photoélastiques sont placés entre deux polariseurs. Le retard de phase qu'ils imposent à la lumière les traversant dépend de la contrainte qu'ils subissent. Les grains sous contrainte sont illuminés en raison du retard de phase qu'ils induisent. De cette façon, il est possible de visualiser la manière dont la force provenant du rectangle du haut se distribue vers le bas à travers certains grains. Ces chaînes de forces donnent souvent lieu à des phénomènes étranges.

Un des exemples les plus pertinents est l'effet Janssen, connu depuis 1895 [31]. Durant le remplissage d'un silo, la masse de grains pesant sur la surface du fond augmente, ce qui accroît la pression P linéairement avec la masse m . Cependant, il est systématiquement observé qu'à partir d'une certaine hauteur de grains, cette pression sature si on ajoute encore de la matière à la colonne granulaire [33]. Chaque grain a tendance à répartir sur les autres grains la force qui s'applique sur lui. Cela génère un réseau de forces réparties dans tout le matériau.

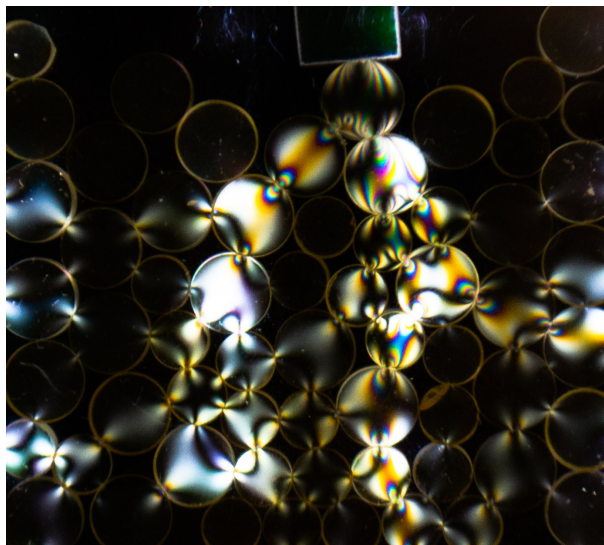


FIGURE 1.8 – Chaînes de forces entre des disques, mises en évidence par l’effet photoélastique. La lumière passe préalablement par un polariseur avant d’éclairer les grains. Les disques sous contraintes induisent un retard de phase à la lumière polarisée. Un second polariseur, dont l’axe de polarisation est perpendiculaire au premier, filtre la lumière en sortie et atténue fortement les rayons qui n’ont pas été retardés. Expérience réalisée d’après les instructions de [32].

Cependant, dans le cas du silo, la limitation imposée par les bords arrête la répartition des forces aux grains en contact avec les parois, qui leur transmettent une partie de la contrainte. La raison de la saturation de la pression au fond du silo s’explique par le fait qu’une partie de cette pression est supportée par les parois. Ainsi, les chaînes de forces sont directement liées aux forces de contact. C’est grâce à la force de frottement statique, introduite dans la partie 1.2.2, entre les grains et les parois qu’il se forme des arches permettant de porter le poids des couches supérieures de grains. La force est transmise de grain en grain par les contacts de Hertz.

Janssen a formulé un modèle qui rend compte de ce phénomène et permet d’estimer la profondeur typique $\lambda = \frac{D}{4\mu K}$ à partir de laquelle la pression sature

$$P(z) = \lambda \rho g \left(1 - \exp^{-z/\lambda}\right), \quad (1.8)$$

où D est le diamètre du silo et μ le coefficient de friction entre un grain et la paroi. La constante $K \in [0, 1]$ est la proportion de la contrainte qui est transmise horizontalement. Cette constante est intimement liée au réseau de forces qui répartit de manière anisotrope la contrainte verticale dans les directions horizontales.

1.3.2 Ségrégation granulaire

L’effet de ségrégation granulaire est souvent observable lors d’écoulement de matériaux granulaires [34–36]. Nombreux sont ceux qui ont déjà pu observer le mauvais mélange de leur muesli au petit déjeuner : la plupart des gros morceaux sont en haut du paquet, tandis que les plus petits granulés se retrouvent au fond. Il est tentant de mélanger les morceaux en

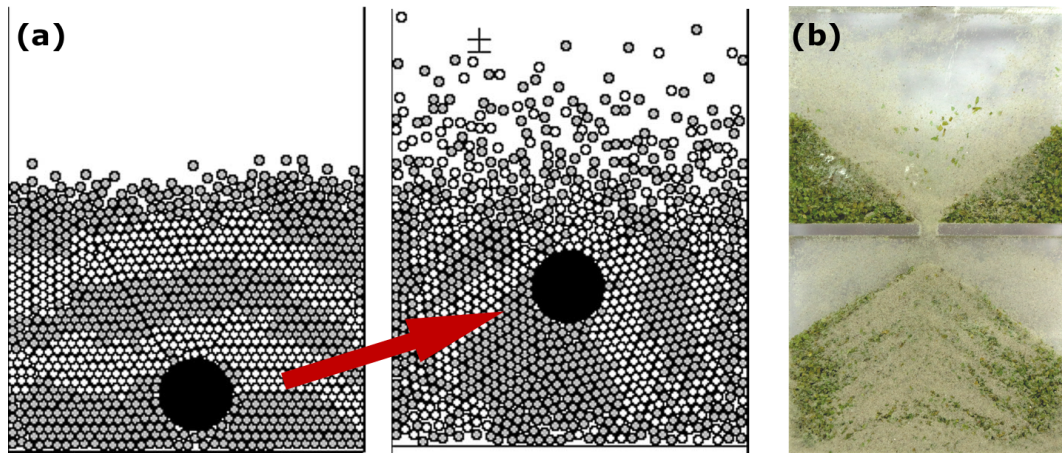


FIGURE 1.9 – (a) Effet noix du Brésil. Après chaque secousse la grosse sphère remonte un peu plus à la surface du milieu granulaire constitué par les petites sphères. Image issue de [39]. (b) Stratification d'un mélange granulaire composé de sable clair et de boulgour vert après écoulement dans un sablier. Une succession de couches vertes et claires en alternance est visible dans la partie basse du sablier.

secouant le paquet, mais cela ne fait qu'aggraver le problème. Ce phénomène est couramment appelé "l'effet noix du Brésil", en référence au fruit du même nom qui a naturellement tendance à produire cet effet lors de son transport dans des sacs [37,38]. La Figure 1.9 (a) schématise la remontée d'une grosse sphère dans un milieu granulaire constitué de petites sphères sous l'action d'une secousse. Néanmoins, la ségrégation granulaire ne se réduit pas à cet effet. La percolation des petits grains à travers les interstices créés entre les plus grosses particules participe également à cette ségrégation [38]. D'autres études tendent à montrer que de la convection peut apparaître dans un matériau granulaire vibré et générer ce phénomène [39–41]. L'écoulement du matériau granulaire peut également mener à une séparation des espèces [42]. La Figure 1.9 (b) illustre une stratification de deux types de grains, mise en évidence par des couleurs différentes, après l'écoulement du mélange initialement homogène.

Ainsi, lorsqu'il existe une différence de taille significative entre deux types de grains, la ségrégation de ces deux espèces apparaît de manière plus ou moins forte suivant les conditions expérimentales, et ce dès que le matériau granulaire est sollicité mécaniquement, par écoulement ou sous vibration [43]. L'effet de ségrégation granulaire est rarement désiré car les propriétés de la poudre sont altérées. Il est souvent la cause de problèmes lors de processus de fabrication industrielle [36,44–46].

1.3.3 Dilatance

Contrairement à la plupart des matériaux solides, les matériaux granulaires ont la possibilité de se dilater sous l'effet d'une contrainte [47,48]. En effet, les grains sont au départ empilés dans une configuration relativement dense. Lorsqu'une contrainte suffisamment forte s'applique, la structure initiale se casse pour créer un empilement moins dense, permettant aux grains de se déplacer pour déformer le milieu. Cette déformation donne lieu à une augmentation de volume comme l'illustre la Figure 1.10. On se situe dans le cas quasi-statique puisqu'il y a deux états d'équilibre statique entre lesquels les grains se sont déplacés. Ce

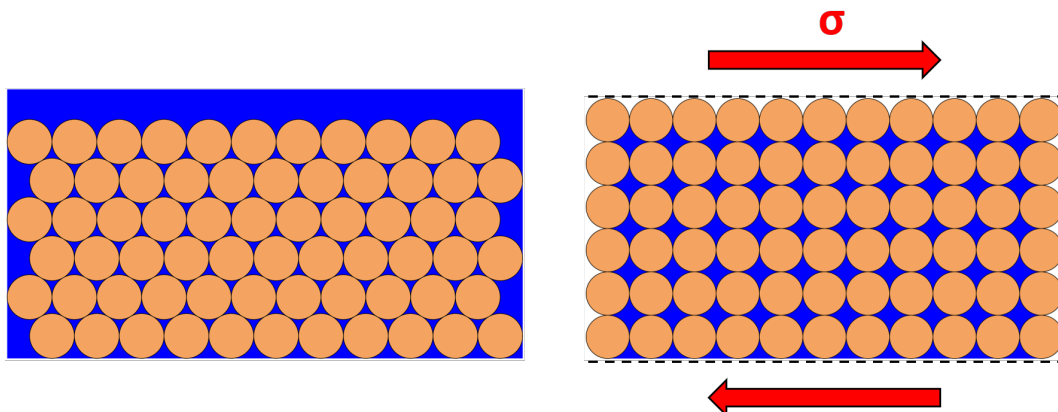


FIGURE 1.10 – (gauche) Empilement dense de grains où il y a peu d'espace pour le liquide. (droite) Empilement plus lâche sous contrainte de cisaillement σ : le liquide peut s'insérer entre les espaces nouvellement créés.

phénomène est observable lorsqu'une personne marche sur le sable mouillé d'une plage. La contrainte exercée par le poids transmis par le pied cisaille localement le sable qui se dilate en conséquence. Cette dilatation aboutit à une augmentation du volume disponible entre les grains. Il en résulte une absorption de l'eau qui va se loger dans ce volume nouvellement créé, asséchant le sable en surface tout autour du pied.

1.4 Compaction d'empilements granulaires

Un paramètre clé décrivant les matériaux granulaires est la compacité $\eta = V/V_a$, avec V le volume réel des particules constituant le milieu et V_a le volume apparent, c'est-à-dire le volume du matériau mesuré macroscopiquement. Ce paramètre intervient dans bon nombre de modèles rhéologiques ou de résistance des matériaux [4, 30, 49, 50]. Pour un empilement aléatoire de sphères, η est compris entre $\eta_{RLP} \approx 0.55$, qui correspond à l'empilement le plus lâche mécaniquement stable [51–53], appelé "Random Loose Packing" (RLP), et $\eta_{RCP} \approx 0.64$, qui est l'empilement le plus compact possible à atteindre expérimentalement [54–56], appelé "Random Close Packing" (RCP). L'ensemble des valeurs comprises entre η_{RLP} et η_{RCP} correspond à un "état bloqué" [51]. Ce terme signifie que η est mécaniquement stable, même si d'un point de vue énergétique il n'est pas à son minimum de potentiel. Lorsqu'un matériau granulaire vibre, avec une oscillation sinusoïdale ou une succession de secousses, sa compacité η augmente [57] comme le montre la Figure 1.11. Cette densification est un phénomène lent comme en atteste l'échelle logarithmique de l'abscisse. Le matériau granulaire évolue de son état initial η_0 , correspondant à un empilement de type RLP, jusqu'à son état de saturation η_∞ , qui est un empilement de type RCP. C'est le processus de compaction granulaire. Dans ce travail, nous nous concentrerons sur ce phénomène particulier.

Une hypothèse serait que le paysage du potentiel du système soit complexe, avec de nombreux minima locaux [23, 58]. Pour passer d'un état η à un autre plus compact, il faut franchir une barrière énergétique. Il y aurait à chaque oscillation une probabilité qu'un grain passe une barrière énergétique pour prendre une configuration plus favorable. Il y a donc une succession d'états d'équilibre qui se suivent à chaque oscillation. Pour cette raison, on

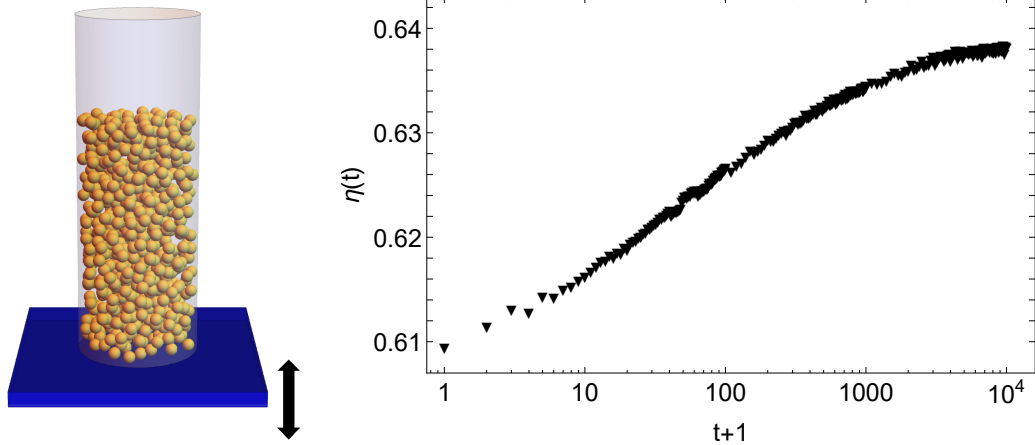


FIGURE 1.11 – (gauche) Schéma d'un empilement granulaire. La plupart des expériences de compaction se font dans une cellule cylindrique attachée à un plateau qui oscille de haut en bas. L'oscillation peut être très différente d'une expérience à l'autre. L'application d'un signal sinusoïdal peut autant se faire qu'un signal asymétrique. (droite) Exemple de courbe de compaction $\eta(t)$ en fonction du nombre d'oscillations appliquées dans un graphique semi-logarithmique. On observe une rapide croissance de η en fonction de t . Cette croissance est de plus en plus lente à mesure que t augmente jusqu'à la saturation de la courbe en η_∞ .

peut considérer que la compaction granulaire se situe dans le cas quasi-statique.

Le processus de compaction s'avère très utile car il permet de caractériser n'importe quel matériau granulaire [18, 59–61]. Chaque type de poudre a une courbe de compaction distincte des autres comme le montre la Figure 1.12 (a). Elles se distinguent les unes des autres par leur compacité initiale η_0 , leur amplitude de compaction $\Delta\eta = \eta_\infty - \eta_0$ et leur rapidité de saturation. Les cercles désignent, en effet, le nombre d'oscillations nécessaires pour atteindre $\frac{\Delta\eta}{2}$. Dès lors, il est possible de les différencier en fonction de leur courbe de compaction. Pour cette raison, la compaction granulaire est utilisée comme une méthode de caractérisation des poudres. La simplicité de mise en oeuvre et la bonne reproductibilité de la plupart des dispositifs expérimentaux permet une utilisation de cette méthode aussi bien dans les milieux scientifiques que dans les milieux industriels [59].

Il existe différents indices pour classer les poudres en fonction de leur coulabilité. Par exemple, le rapport de Hausner $Hr = \frac{\eta_{tap}}{\eta_0}$, η_{tap} étant la densité après un certain nombre d'oscillations, est couramment utilisé [61]. La dynamique de compaction permet également de mesurer la coulabilité d'une poudre. En effet, il a été montré que le temps typique de compaction, noté généralement τ , est corrélé aux propriétés d'écoulement de la poudre comme le montre la Figure 1.12 (b). Un τ élevé correspond à une mauvaise coulabilité tandis qu'un faible τ signifie que la poudre s'écoule bien [62]. Dans ce travail, nous nous concentrons sur τ pour étudier la dynamique de compaction et définissons la manière dont il peut être mesuré.

La physique liant la courbe de compaction et la coulabilité d'une poudre reste lacunaire [61]. Des corrélations entre différentes mesures peuvent être établies [18, 59, 62] mais aucune ne donne d'information directe sur l'intensité des interactions entre particules (ni leur type).

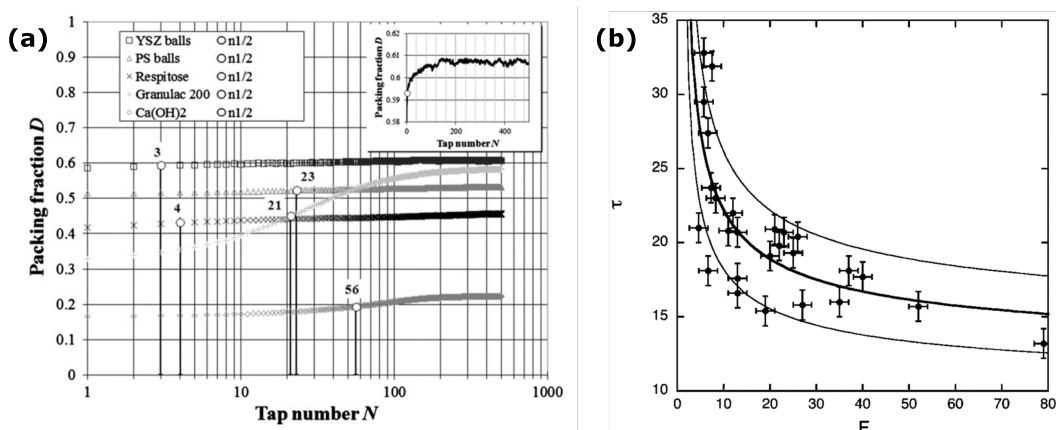


FIGURE 1.12 – (a) Courbes de compaction pour différentes poudres. La compacité η est tracée en fonction du nombre de secousses (d’oscillations) dans un graphique semi-logarithmique. On remarque que chaque poudre donne une courbe de compaction différente. Image issue de [60]. (b) Corrélation entre le temps typique de compaction τ et l’indice de coulabilité F . Cette dernière mesure reflète la capacité d’une poudre à s’écouler. Image issue de [62].

1.5 Objectif de la thèse

De nombreuses questions restent ouvertes concernant le phénomène de compaction. Bien qu’utilisé pour la caractérisation des matériaux granulaires, le manque de modèles physiques robustes pour lier ce phénomène aux propriétés des particules limite l’efficacité de son utilisation. Par ailleurs, densifier un matériau granulaire est un but en soit dans certaines applications [63]. Il est donc nécessaire d’optimiser le processus pour obtenir le matériau granulaire le plus dense en un temps réduit.

Dans ce travail, nous étudions le phénomène de compaction pour répondre à une question fondamentale : quels sont les paramètres qui contrôlent l’amplitude et la dynamique de compaction. Si les mécanismes dictant la compaction sont mieux cernés, il serait alors possible d’optimiser le processus et d’établir des liens avec les propriétés des grains. Comme la compaction dépend de nombreux paramètres, nous tentons dans ce travail de répondre à cette question selon deux aspects principaux : l’effet des conditions de vibration et l’effet de la granulométrie sur la compaction.

Pour commencer, nous étudions l’impact des conditions de vibration sur la compaction pour un système monodisperse. L’accélération, la fréquence et l’amplitude d’oscillation sont des paramètres de contrôle nécessairement rencontrés lors de ce processus. Il est donc important de connaître l’influence de ces paramètres. Ensuite, comme les milieux granulaires sont rarement monodisperse, nous étudions également l’impact de la polydispersité sur la compacité et la dynamique de compaction.

Cette thèse se compose d’un ensemble de cinq articles liés autour de notre objectif principal. Après un rappel (Chapitre 2) des connaissances sur la compaction liées à notre problématique, ces articles se répartissent en quatre chapitres. Le Chapitre 3 présente un article portant sur l’impact des conditions de vibrations. Nous étudions comment la fréquence et l’accélération des secousses peuvent impacter les résultats. La direction de chaque vibration est également prise en compte. Ensuite, le Chapitre 4 introduit deux articles sur

les mélanges granulaires composés de deux tailles de particules. Un modèle de compacité γ est développé. Nous présentons également un résultat original sur la dynamique de compaction que nous comparons avec d'autres travaux. Le Chapitre 5 introduit un article sur les mélanges à trois tailles de particules. Le modèle de compacité du chapitre précédent est élargi à ces mélanges ternaires. La dynamique de compaction est également discutée et une approche est proposée pour la modéliser. Le Chapitre 6 présente un article étudiant l'impact de la polydispersité du milieu sur la compacité. La dynamique de compaction est également discutée. Pour terminer, une conclusion donne une réponse partielle aux questions posées à travers ces différents travaux. Enfin, nous développons des perspectives que cette thèse peut apporter sur la compréhension du phénomène de compaction granulaire.

Chapitre 2

État de l'art

2.1 Dynamique de compaction

Différents modèles ont été proposés pour décrire la dynamique de compaction. Malheureusement, la plupart sont empiriques ou semi-empiriques [64]. Le lien entre cette dynamique et les interactions entre particules n'est toujours pas formellement établi. Les deux modèles les plus connus pour reproduire le processus de compaction sont la loi exponentielle étirée proposée par Philippe et Bideau, semblable à l'équation de Kohlrausch-Williams-Watts [65], et la loi logarithmique de Knight [57], définies respectivement par

$$\eta(t) = \eta_\infty - (\eta_\infty - \eta_0) \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^B \right] \quad (2.1)$$

et

$$\eta(t) = \eta_\infty - \frac{\eta_\infty - \eta_0}{1 + B \ln \left(1 + \frac{t}{\tau} \right)}, \quad (2.2)$$

où η_0 est la compacité à l'instant initial et η_∞ la compacité asymptotique. La variable t peut représenter soit le temps, soit le nombre de secousses qu'a effectué le système sous vibrations. Le choix entre ces deux possibilités dépend de l'usage que l'on souhaite faire de la loi de compaction. Cependant, il est plus courant d'employer t comme un nombre de secousses. En effet, cela permet de rendre t indépendant de la fréquence des secousses. Le paramètre τ représente alors le nombre typique de secousses nécessaires pour atteindre le point d'inflexion de la courbe de compaction, et est représentatif de la dynamique de compaction. Ces deux lois sont ajustées par les trois paramètres η_∞ , τ et B . On peut observer sur la Figure 2.1 les ajustements obtenus avec les équations (2.1) et (2.2). Ces deux lois peuvent être normalisées lorsqu'on pose

$$\eta^* = \frac{\eta - \eta_0}{\eta_\infty - \eta_0}. \quad (2.3)$$

On obtient alors

$$\eta^*(t) = 1 - \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^B \right] \quad (2.4)$$

et

$$\eta^*(t) = 1 - \frac{1}{1 + B \ln \left(1 + \frac{t}{\tau} \right)}. \quad (2.5)$$

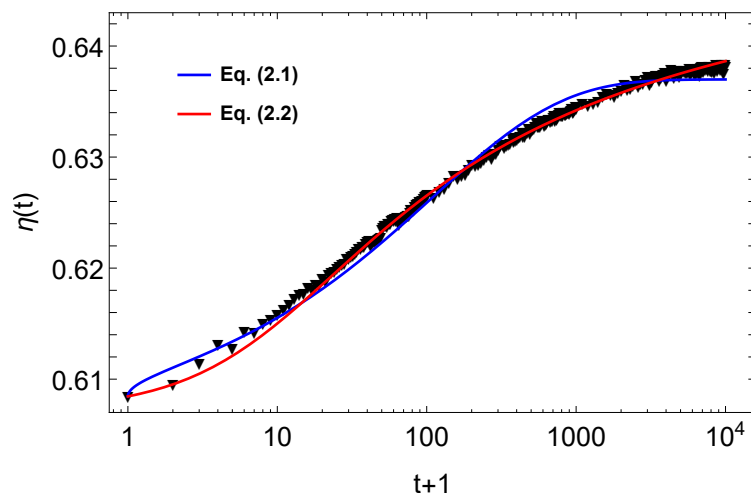


FIGURE 2.1 – Courbes de compaction obtenues avec les équations (2.2) et (2.1). Les ajustements sont réalisés sur un échantillon de données expérimentales que nous avons obtenu avec des billes sphériques d'environ 500 μm de diamètre. La compacité $\eta(t)$ est tracée en fonction du nombre de secousses t .

L'équation (2.1) peut être obtenue à partir de l'équation d'Arrhenius [65–67]. D'une part, si on suppose que le taux de compaction C évolue comme

$$C = \frac{k(\eta_\infty - \eta(t))}{\eta_\infty - \eta_0}, \quad (2.6)$$

et que d'autre part, il suit une loi d'Arrhenius

$$C = k \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^B \right], \quad (2.7)$$

on retombe rapidement sur le modèle de Philippe et Bideau.

L'équation (2.2) peut être obtenue sur base d'un modèle proposé par Boutreux et de Gennes [68]. Le volume libre moyen par grain vaut

$$v_f = v \left(\frac{1}{\eta} - \frac{1}{\eta_\infty} \right), \quad (2.8)$$

avec v le volume d'un grain. Boutreux et de Gennes imaginent que

$$\left(\frac{1}{\eta} - \frac{1}{\eta_\infty} \right) \propto \frac{\eta_\infty - \eta}{\eta_\infty^2}. \quad (2.9)$$

Si on admet que la distribution des trous de taille Ω suit une loi de Poisson

$$P(\Omega) = \frac{1}{v_f} \exp \left(- \frac{\Omega}{v_f} \right), \quad (2.10)$$

on peut supposer que la probabilité qu'une particule comble un trou de taille $\Omega > v$ donne

$$p = \int_v^\infty P(\Omega) = \exp \left(- \frac{v}{v_f} \right) = \exp \left(- \frac{\eta_\infty^2}{\eta_\infty - \eta_0} \right). \quad (2.11)$$

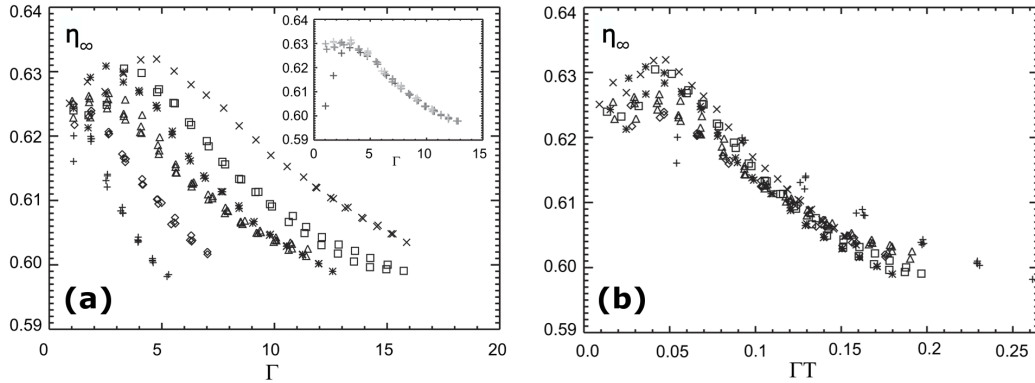


FIGURE 2.2 – (a) Compacité finale η_∞ obtenue après un grand nombre d’oscillations sur la branche réversible en fonction de l’accélération réduite Γ . (b) Compacité finale η_∞ rassemblée sur une courbe maîtresse en fonction de ΓT . Images issues de [69].

Boutreux et de Gennes ont supposé que la vitesse de compaction était proportionnelle à cette probabilité et ont proposé l’équation différentielle suivante

$$\frac{d\eta}{dt} = k p. \quad (2.12)$$

En résolvant cette équation différentielle, une loi semblable à (2.2) est obtenue, soit

$$\eta(t) = \eta_\infty \frac{\eta_\infty}{\ln(t) + \ln(t_0)}, \quad (2.13)$$

avec $k = t_0 \frac{(\eta_\infty - \eta_0)^2}{\eta_\infty^2}$. Cette approche fait le lien entre la dynamique de compaction et l’espace disponible de plus en plus restreint ayant tendance à ralentir cette dynamique.

Les lois (2.1) et (2.2) sont très utiles car elles permettent d’obtenir des temps typiques τ qui caractérisent la vitesse à laquelle le système atteint la saturation η_∞ . Il a été montré que ce temps de relaxation est lié aux propriétés d’écoulement d’un matériau granulaire [62]. De plus, les paramètres d’ajustement η_∞ et B peuvent également être utilisés comme indicateurs des propriétés d’écoulement [18, 23, 58, 59]. Le problème de ces paramètres est qu’ils n’ont toujours pas, à l’heure actuelle, de signification physique bien établie. Dans ces circonstances, il est difficile de prédire la valeur des forces s’appliquant sur les grains sur base de ces paramètres. Ces paramètres permettent de classer les poudres par ordre de coulabilité, de densité, de cohésion, *etc.*

2.2 Influence des conditions de vibration

Il a été longtemps admis que l’accélération réduite $\Gamma = \frac{A(2\pi f)^2}{g}$, avec A l’amplitude d’oscillation, f la fréquence de vibration et g l’accélération terrestre, était le paramètre de contrôle le plus pertinent pour la compaction. Des travaux ont montré que le temps typique de compaction τ décroît avec Γ [65, 66, 70] et que la compacité finale évolue avec l’accélération réduite comme représenté sur la Figure 2.2 (a). Pourtant, ce paramètre est insuffisant à lui seul pour contrôler le système. En effet, en faisant varier la fréquence, il a été remarqué que les résultats diffèrent pour un même Γ [71]. Des études ont cependant mis au jour

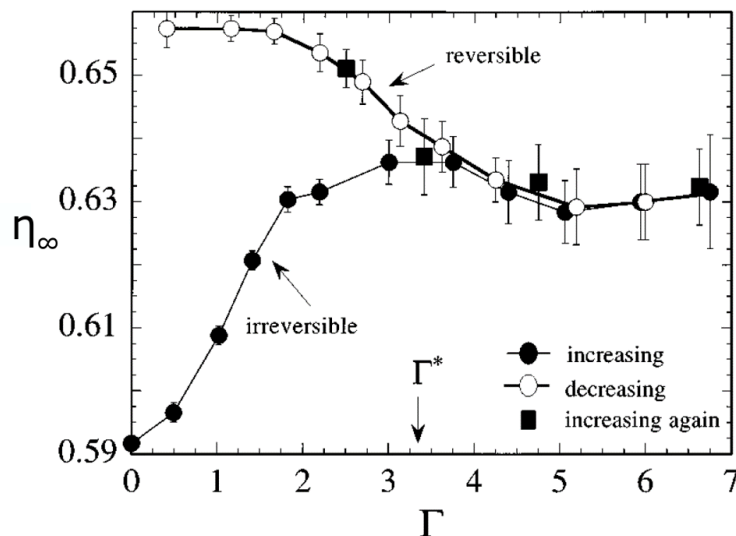


FIGURE 2.3 – Compacité finale η_∞ après un grand nombre d'oscillations en fonction de l'accélération réduite Γ . La branche du dessus correspond au cas réversible, tandis que celle du dessous correspond au cas irréversible. La branche réversible est obtenue en augmentant Γ au delà de Γ^* , puis en réduisant l'accélération. Image issue de [72].

que d'autres paramètres de contrôle peuvent devenir de meilleurs candidats. Par exemple, Dijkstra et van Hecke [69] ont mis en évidence que les résultats pour η_∞ pouvaient être regroupés autour d'une courbe maîtresse en fonction de ΓT , comme représenté sur la Figure 2.2 (b), où T est la période entre deux secousses. Ces résultats ont été obtenus en considérant la compacité atteinte dans le cas réversible. En effet, pour de faibles accélérations $\Gamma < 3$, la compacité finale atteinte ne correspond pas à un état "d'équilibre". Comme le montre la Figure 2.3, la compacité maximale atteignable par le système est plus grande que celle obtenue effectivement si on se contente de garder l'accélération $\Gamma < 3$ constante. Les valeurs plus élevées sur la branche réversible sont obtenues en compactant le système pour $\Gamma > 3$ puis en faisant doucement décroître l'accélération [73, 74]. Une autre étude a mis en avant que l'énergie Ξ injectée dans le système à chaque secousse est un meilleur paramètre de contrôle que Γ [75]. Nous faisons remarquer que ces deux travaux semblent indiquer que la vitesse d'oscillation $A\omega = A 2\pi f$ pourrait être le paramètre de contrôle le plus adéquat. D'une part nous avons $\Gamma T \propto A\omega$, et d'autre part l'énergie injectée dans le système est directement liée à la vitesse d'oscillation $\Xi \propto (A\omega)^2$.

Si l'amplitude A , la fréquence f et l'accélération réduite Γ de vibration sont des paramètres qui ont été largement explorés pour décrire le phénomène de compaction, il y a eu peu d'études sur l'impact de la direction de vibration [71, 76, 77]. De fait, la vibration verticale est souvent préférée à une vibration horizontale. D'ailleurs, nous avons trouvé peu de travaux utilisant une vibration horizontale [76, 78, 79].

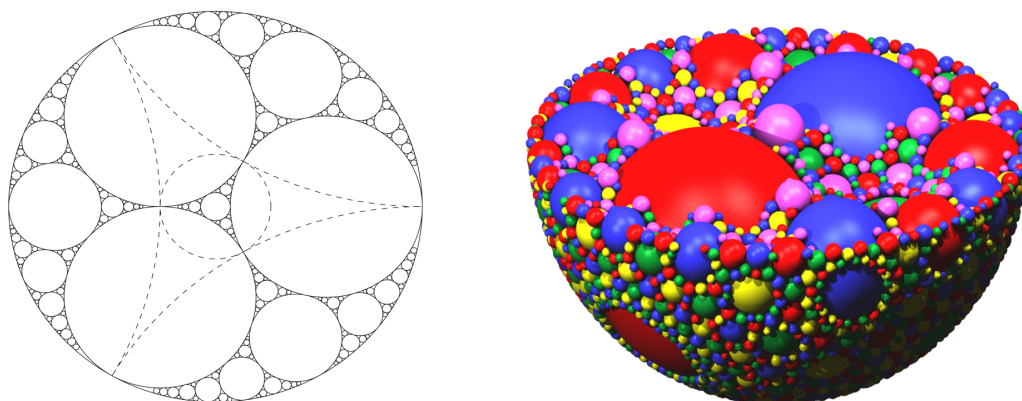


FIGURE 2.4 – (gauche) Empilement de sphères d’Apollonius en deux dimensions. Chaque trou est successivement rempli par une sphère de plus en plus petite. Empilement de sphères d’Apollonius en trois dimensions. Image issue de [80].

2.3 Influence de la polydispersité

L’impact de la distribution en tailles des particules constituant un milieu granulaire est un sujet d’étude ancien. Dans l’Antiquité, Apollonius explique de quelle manière l’espace peut être complètement rempli par une succession de sphères de plus en plus petites [80] comme l’illustre la Figure 2.4. Le problème de cette approche est qu’elle ne considère que des empilements parfaits, or, expérimentalement, on a toujours un empilement aléatoire de particules.

Pour cette raison, d’autres travaux ont été réalisés sur la compacité en fonction de la polydispersité du milieu [81–85]. Furnas propose un modèle théorique permettant de prédire la compacité des mélanges composés de deux tailles de particules [86]. Il considère deux cas extrêmes : soit les grandes particules dominant le mélange, soit ce sont les petites particules.

Lorsque le mélange est dominé par les grandes, Furnas suppose que le volume apparent est uniquement dominé par les grandes particules, les petites ne faisant que remplir les interstices résiduels. Les grandes particules formant un empilement aléatoire, on a

$$V_I = \frac{V_l}{\eta_m}, \quad (2.14)$$

V_l étant le volume réel des grandes particules et η_m la compacité lorsqu’elles constituent un système monodisperse.

Dans le cas d’un mélange dominé par les petites, ce sont ces dernières qui forment un empilement aléatoire. Cependant, il faut ajouter le volume supplémentaire créé par la présence des grandes particules. On a alors

$$V_{II} = \frac{V_s}{\eta_m} + V_l, \quad (2.15)$$

V_s étant le volume réel de petites particules.

Furnas propose que le volume apparent du système correspond au maximum des valeurs V_I et V_{II} données par les équations (2.14) et (2.15). La compacité étant le rapport entre le volume réel total de particules $V = V_l + V_s$ et ce volume apparent, on obtient le modèle

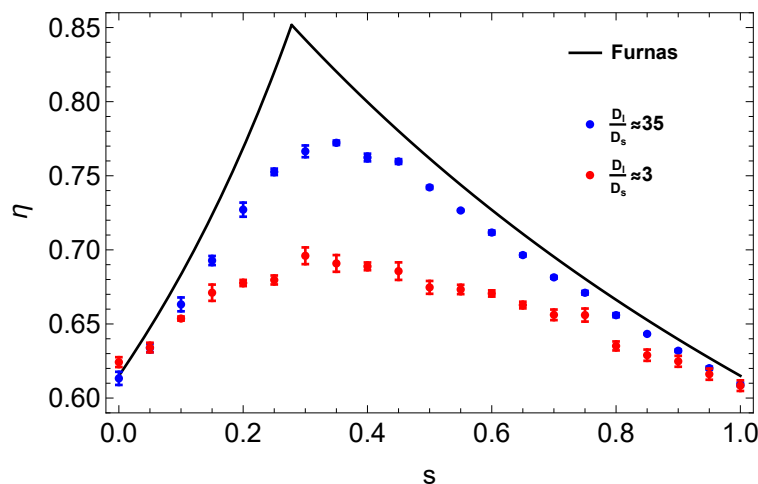


FIGURE 2.5 – Modèle de Furnas représenté par la courbe noire. On peut comparer l'adéquation entre ce modèle et les données expérimentales pour des rapports de tailles $\frac{D_l}{D_s} \approx 35$ et $\frac{D_l}{D_s} \approx 3$. Le modèle est plus adapté pour décrire les mélanges binaire avec un grand rapport de tailles.

suivant

$$\eta = \frac{V}{\max\{V_I, V_{II}\}}. \quad (2.16)$$

La Figure 2.5 montre l'accord entre le modèle et des données expérimentales pour des rapports de tailles $\frac{D_l}{D_s} \approx 35$ et $\frac{D_l}{D_s} \approx 3$, avec D_l et D_s les diamètres respectifs des grandes et petites particules. Notons que ce modèle semble adéquat pour prédire le comportement de la compacité η en fonction de $s = \frac{V_s}{V_s + V_l}$, la fraction volumique de petites particules, pour un grand rapport de tailles. En revanche, le modèle s'éloigne de la réalité lorsqu'un petit rapport de tailles est considéré. Dans ce cas, l'hypothèse de petites particules pouvant remplir les espaces entre les grandes devient difficile à accepter.

D'autres modèles ont été proposés pour modéliser les mélanges granulaires à deux ou plusieurs tailles de particules [81–83, 87, 88]. Ils se basent sur le modèle de Furnas en y ajoutant des corrections. Celles-ci sont souvent basées sur des paramètres d'ajustement. De plus, ces modèles ne tiennent pas compte de l'hétérogénéité du système, or, la ségrégation est un phénomène à tenir en compte lorsqu'on compacte des mélanges granulaires. En effet, des travaux ont démontré que la ségrégation diminue η [38, 89–91]. Comme nous l'avons expliqué dans le Chapitre 1, la ségrégation est souvent présente dans les milieux granulaires. Dans le cas d'un processus de compaction, l'effet noix du Brésil serait probablement observé. En outre, durant le remplissage de la cellule, il est également possible que l'écoulement des grains génère un phénomène de ségrégation. Nous tenons compte de ce phénomène dans ce travail et nous montrons qu'il est possible de modéliser la compacité quelque soit l'hétérogénéité d'un mélange.

Si la compacité pour les mélanges a été largement étudiée, nous avons en revanche trouvé assez peu de travaux sur la dynamique de compaction en fonction des mélanges [68, 92, 93]. Nonobstant, la coulabilité d'un mélange granulaire est un facteur important dans les processus industriels.

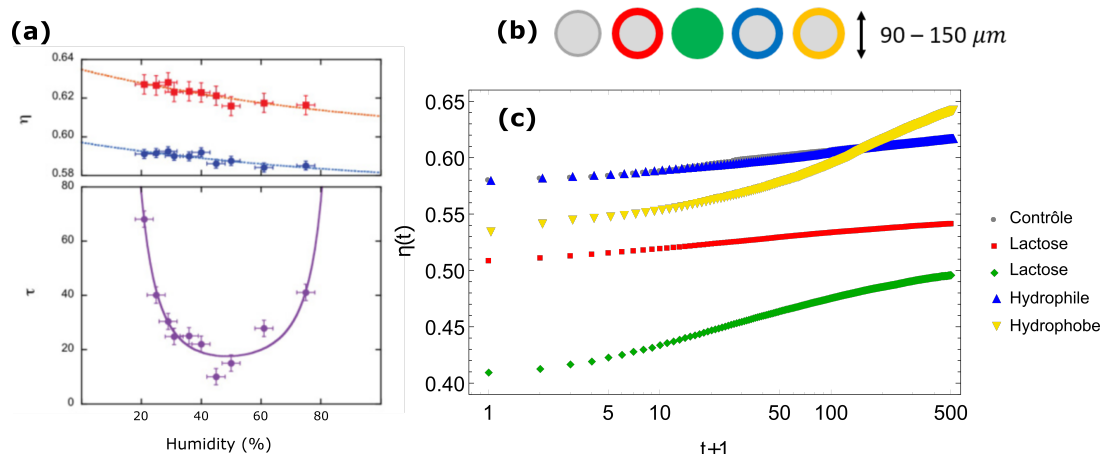


FIGURE 2.6 – (a) Compacité initiale η_0 , en bleu, finale η_∞ , en rouge, et temps typique de compaction τ obtenus avec l'équation (2.1) en fonction du taux d'humidité. Image issue de [58]. (b) Schéma des billes constituant les cinq poudres différentes. Chacune, excepté le lactose aggloméré, est traitée chimiquement pour changer l'état de surface afin de modéliser des poudres aux propriétés différentes mais avec la même densité. La première poudre, en gris, est composée de billes de verre simples qui font office de poudre de référence. Le rouge, le bleu et le jaune schématisent respectivement des revêtements de lactose, hydrophile et hydrophobe. Le vert représente le lactose aggloméré en sphères de la même taille que les billes de verre. (c) Courbes de compaction pour les différentes poudres. Le code couleur est le même que pour la Figure (b).

2.4 Influence de la cohésion

La cohésion a un impact direct sur la compacité et la dynamique de compaction d'un matériau granulaire. Il est pourtant difficile de connaître son origine exacte. La cohésion regroupe l'ensemble des forces attractives entre les grains. Elle peut provenir des charges électrostatiques, des ponts capillaires ou des forces de Van der Waals décrites dans le Chapitre 1. Toutes ces forces dépendent de sources variées telles que l'état de surface des particules ou de l'humidité et leur amplitude est difficile à mesurer. La Figure 2.6 (a) illustre l'impact de l'humidité sur les mesures obtenues pour des billes de verre [58]. Sur la Figure 2.6 (b) sont représentés les résultats pour cinq poudres différentes, travaillées dans le cadre d'une collaboration [94]. Chacune est composée de billes de verre qui ont subi un traitement de surface différent pour changer leur propriété sans altérer leur densité, excepté pour le lactose aggloméré. On observe sur la Figure 2.6 (c) que les propriétés chimiques de la surface des particules influencent la dynamique de compaction.

Une expérience utilisant des billes magnétiques comme matériau modèle a mesuré l'influence du nombre de Bond $Bo = \frac{F_c}{P}$, avec F_c la résultante des forces cohésives et P le poids qui s'applique sur un grain, sur la compaction [95, 96]. L'évolution de τ et η en fonction de Bo est observable sur la Figure 2.7. Bien que les interactions entre les grains soient dans ce cas connues, les lois proposées pour lier Bo et les paramètres d'ajustement restent empiriques.

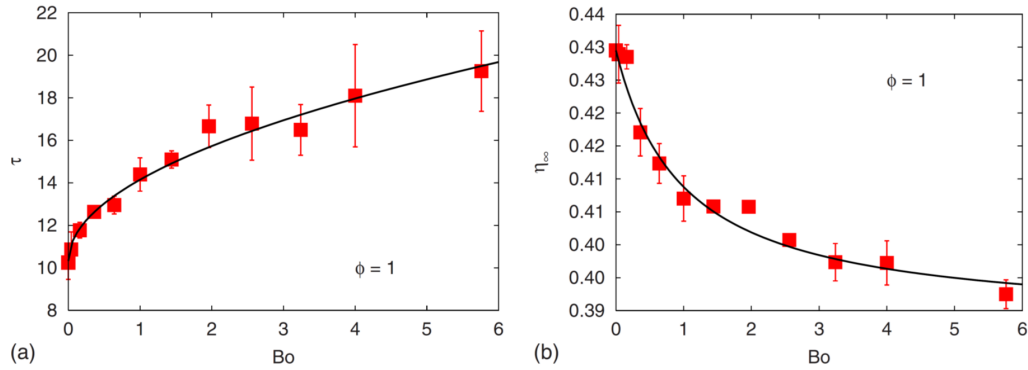


FIGURE 2.7 – (a) Temps de compaction τ en fonction du nombre de Bond Bo. (b) Compacité asymptotique η_∞ en fonction du nombre de Bond Bo. Les paramètres d'ajustement ont été obtenus avec l'équation (2.2). Image issue de [96].

2.5 Résumé

Nous savons que la compacité d'une poudre et sa dynamique dépendent des conditions de vibration. Les différents paramètres qui peuvent être communément contrôlés pour l'oscillation appliquée sont l'amplitude A , la fréquence f et l'accélération Γ , liée au deux premiers paramètres. Il semble que la vitesse d'oscillation $A\omega$, en posant $\omega = 2\pi f$, soit un meilleur paramètre de contrôle. L'effet de la direction de la vibration est cependant moins souvent considéré et il convient donc d'approfondir ce sujet.

La granulométrie du système est également une donnée importante concernant la compacité η . De manière générale, plus un nombre différent de tailles est utilisé, plus il est facile de remplir l'espace disponible. La proportion et le rapport de tailles entre chaque espèce est néanmoins un facteur important. Des modèles prédisent les proportions optimales pour obtenir la plus grande compacité, mais la ségrégation granulaire n'est malheureusement pas prise en compte alors qu'elle est omniprésente dans les matériaux granulaires. La dynamique de compaction des mélanges a été, quant à elle, peu étudiée bien que tout aussi importante en raison de l'utilité du paramètre τ pour caractériser la coulabilité du système.

La cohésion peut influencer les résultats. Elle dépend de nombreux facteurs extérieurs tels que l'humidité, la température, la taille et la nature chimique des grains. Il est donc important de limiter le plus possible ces différentes perturbations en utilisant toujours le même type de particules et en gardant, autant que faire se peut, la température et l'humidité du laboratoire constantes.

Chapitre 3

Systèmes monodisperses

3.1 Problématique

Pour mieux appréhender le phénomène de compaction, il faut débiter par le cas monodisperse, c'est-à-dire un système constitué de grains qui ont tous la même taille. Bien que l'empilement de sphères monodisperses soit un milieu modèle de base, il n'en est pas moins complexe à comprendre. Plus particulièrement, la modélisation de la dynamique du processus de compaction reste un défi. L'article qui suit, préparé pour une future soumission, traite de l'influence des conditions de vibration sur la compacité asymptotique η_∞ et la dynamique de compaction $\eta(t)$. Nous étudions cette dynamique en fonction de l'accélération, de la fréquence, de la direction de vibration et de la taille de la cellule. Nous analysons la manière dont ces paramètres peuvent nous aider à mieux comprendre le processus de compaction et l'optimiser.

3.2 Expérience

Nous avons développé un dispositif expérimental dans le but d'étudier le processus de compaction d'une manière originale. Notre cellule de compaction a la possibilité de vibrer verticalement ou horizontalement. En effet, la majeure partie des expériences de compaction est réalisée sous vibration verticale et une minorité sous vibration horizontale. Il existe, à notre connaissance, peu de travaux comparant ces deux modes de vibration dans le cas d'un processus de compaction [71, 77]. Un schéma de notre dispositif est présenté sur la Figure 3.1 (a). La compacité $\eta(t)$ est mesurée après chaque oscillation t pendant 10^4 oscillations. Pour les 100 premières oscillations, la fréquence de capture d'image est d'une image par oscillation. Cette fréquence de capture est ensuite divisée par 10 après chaque décade d'oscillations afin de limiter la quantité de données à analyser. Après calibration d'un pixel de référence p_0 , correspondant à une hauteur h_0 , la hauteur h de la pile granulaire est mesurée en détectant la transition dans le profil de luminosité, comme représenté dans la Figure 3.1 (b). Connaissant le diamètre du tube D , la masse de la poudre introduite dans la cellule m et la masse volumique réelle du matériau granulaire $\rho \approx 2500 \text{ kg/m}^3$, la compacité peut être calculée par

$$\eta = \frac{4m}{\rho\pi D^2 h}. \quad (3.1)$$

Nous utilisons dans cette expérience exclusivement des billes de verre de $\phi \approx 500 \text{ }\mu\text{m}$ de diamètre. La cellule a la possibilité d'avoir trois diamètres différents : $D = 16 \text{ mm}$,

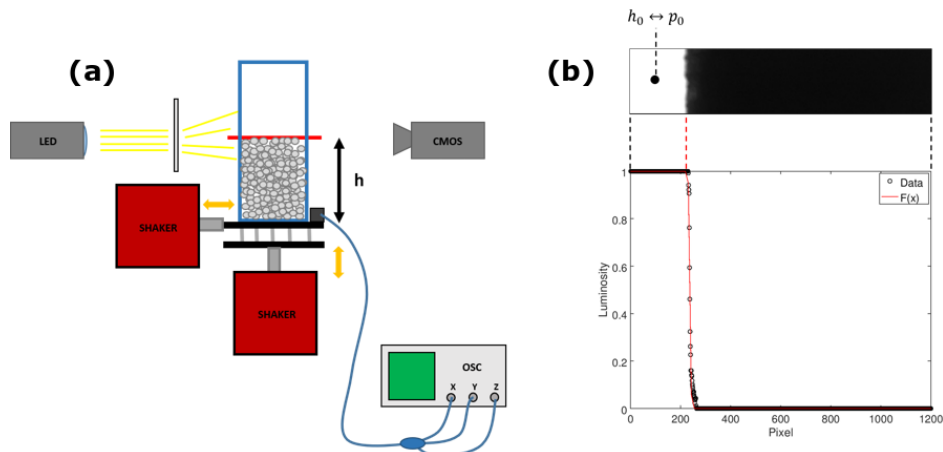


FIGURE 3.1 – (a) Image du dispositif expérimental développé dans notre laboratoire. Un tube en verre cylindrique est attaché à une plateforme capable d’osciller verticalement ou horizontalement. Ces oscillations sont produites par deux shakers contrôlés par un ordinateur. Un accéléromètre calibré mesure l’accélération et des images sont prises après chaque oscillation par une caméra. La cellule est éclairée par derrière afin d’obtenir un contraste avec les billes de verre. (b) Profil de luminosité de l’empilement granulaire. La ligne d’horizon peut être détectée via un ajustement de données avec une fonction sigmoïde.

$D = 21$ mm et $D = 36$ mm. Ce diamètre a une influence sur les résultats. La pile granulaire peut vibrer pour une large gamme de fréquences allant de 30 Hz à 500 Hz et pour différentes accélérations réduites $\Gamma \in [0.6, 3.0]$.

3.3 Résultats principaux

La Figure 3.2 (a) présente des exemples de courbes de compaction réalisées avec une cellule de diamètre $D = 16$ mm. Pour des fréquences f et des accélérations Γ identiques, la compaction sous vibration verticale est bien plus efficace que la compaction sous vibration horizontale. L’amplitude de compaction $\Delta\eta = \eta_\infty - \eta_0$ atteinte est presque toujours plus grande pour le cas d’une vibration verticale et en un temps plus court. Cette tendance est marquée pour des cellules dont le rapport de tailles $L/D \gg 1$, avec L la longueur de la pile granulaire et D le diamètre de la cellule. Lorsque le rapport de tailles de la cellule se rapproche de $L/D = 1$, les résultats deviennent presque identiques. La vitesse de compaction initiale $\mu_0 = \left. \frac{d\eta}{dt} \right|_0$ est également plus grande dans le cas vertical lorsque $L/D \gg 1$.

Il semble donc que la compaction sous vibration verticale soit plus rapide et plus efficace qu’avec une vibration horizontale. Lorsque le rapport de tailles est faible, nous observons toutefois que les résultats se rapprochent et il est possible que le cas horizontal soit plus efficace lorsque $\frac{L}{D} \leq 1$. Nous pensons que la compétition entre la gravité et la vibration joue un rôle dans ce résultat. Dans le cas vertical, les grains bénéficient d’une phase de chute libre où ils peuvent plus facilement se déloger d’une position pour prendre une configuration plus compacte. Ce n’est pas le cas pour une vibration horizontale avec laquelle la pression exercée par les grains des couches supérieures reste constante. Quand $L/D \gg 1$, on peut alors supposer que le poids de ces couches supérieures a une influence plus importante sur

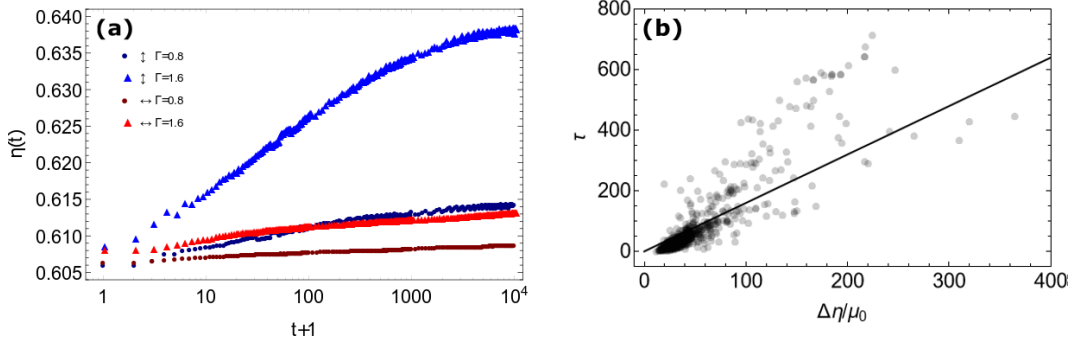


FIGURE 3.2 – (a) Courbes de compaction pour une vibration verticale, en bleu, et horizontale, en rouge. Deux accélérations sont présentées : $\Gamma = 0.8$, données foncées, et $\Gamma = 1.6$, données claires. Les résultats sont présentés dans un graphique semi-logarithmique. (b) Corrélation entre le temps typique de compaction τ et le rapport $\frac{\Delta\eta}{\mu_0}$.

la mobilité des grains que lorsque $L/D \rightarrow 1$, où les couches inférieures subissent moins de contraintes.

La fréquence et l'accélération jouent également un rôle important. Nous observons que $\mu_0 \simeq A\omega$ et $\Delta\eta \simeq A\omega$. Ces résultats sont en adéquation avec les travaux de Dijksman et Ludewig [69, 75]. Il semble que la vitesse d'oscillation $A\omega$, et l'énergie qui lui est associée $\Xi \propto A^2\omega^2$, contrôlent le processus de compaction. Sur base de l'équation (2.2), nous avons trouvé une relation liant le temps typique de compaction τ et le rapport $\Delta\eta/\mu_0$. En dérivant la loi de Knight selon t , on a

$$\frac{d\eta}{dt} = \frac{B}{\tau} \frac{1}{1 + \frac{t}{\tau}} \frac{(\eta_\infty - \eta)^2}{\eta_\infty - \eta_0}. \quad (3.2)$$

À partir de cette loi, on peut déduire que

$$\mu_0 \simeq B \frac{\eta_\infty - \eta_0}{\tau}, \quad (3.3)$$

lorsque $t \rightarrow 0$. La corrélation entre τ et $\Delta\eta/\mu_0$ est présentée sur la Figure 3.2 (b). Le temps de compaction τ semble effectivement proportionnel à $\Delta\eta/\mu_0$.

Nous pensons que cette dépendance entre le temps de compaction et la dérivée initiale de la courbe de compaction μ_0 pourrait lier τ à la mobilité des grains et justifier son utilisation comme indicateur de coulabilité d'un matériau granulaire. Lumay *et al.* a mesuré, dans deux précédents travaux [97, 98], la mobilité des grains nommée ν lors d'un processus de compaction d'un empilement 2D. Il est montré que ν décroît à mesure que le système se densifie. La Figure 3.3 compare $\mu/\Delta\eta$, que nous avons mesuré à partir de la dérivée $\frac{d\eta}{dt}$, avec la mobilité des grains ν mesurée dans [97]. On peut voir que les deux courbes semblent présenter le même type de comportement. D'ailleurs, notre résultat est bien reproduit par la loi initialement développée pour la mobilité [98, 99]

$$\nu = \nu_0 (1 - \eta^*) \exp(-a\eta^*), \quad (3.4)$$

où a est un paramètre d'ajustement. Toutefois, ce résultat doit être considéré avec prudence puisque cette loi a été proposée pour un empilement deux dimensions alors que nous avons, dans notre cas, un empilement granulaire trois dimensions.

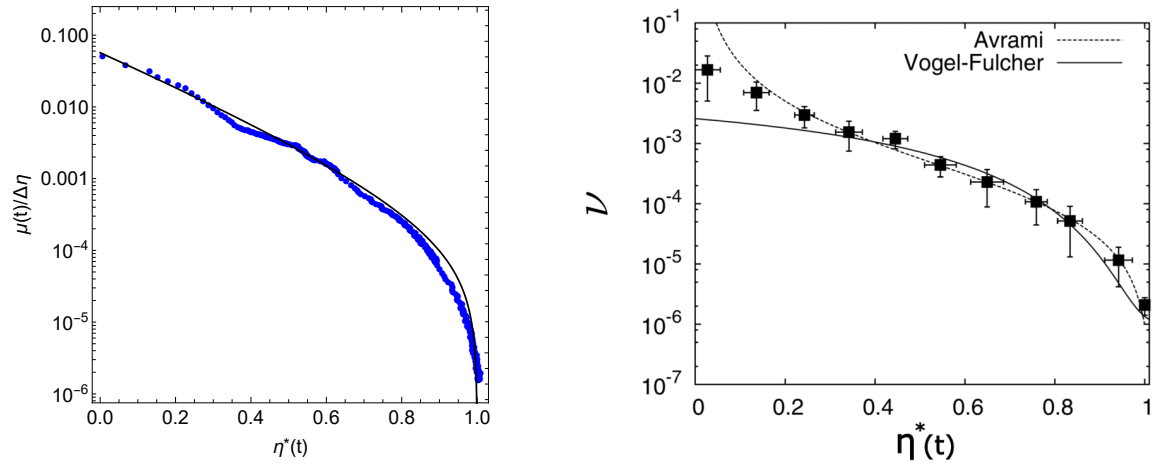


FIGURE 3.3 – (gauche) Vitesse de compaction $\mu = \frac{d\eta}{dt}$, renormalisée par $\Delta\eta$, en fonction de la compacité réduite η^* . (droite) Mobilité des grains ν en fonction de la compacité réduite η^* . Image issue de [97].

3.4 Résumé

Nous venons de voir que la compaction est généralement plus rapide avec une plus grande amplitude de compaction lorsqu'une vibration verticale est utilisée. Nous avons montré que μ_0 et $\Delta\eta$ augmentent linéairement avec $A\omega$. Ces résultats sont cependant plus marqués lorsque la cellule est plus haute que large. Effectivement, lorsqu'on utilise un rapport de tailles $L/D \rightarrow 1$, les vibrations verticales et horizontales semblent donner des résultats équivalents. Cela peut avoir un intérêt pour la conception d'une cellule de compaction et les conditions de vibration qu'on souhaite appliquer aux matériaux granulaires.

De plus, nous avons trouvé une loi de proportionnalité $\tau \propto \Delta\eta/\mu_0$ que nous mettons en lien avec la mobilité des grains ν . Nous verrons que cette loi pourra nous être utile plus loin dans ce travail.

Compaction dynamics under vertical or horizontal vibration

Salvatore Pillitteri, Geoffroy Lumay, Eric Opsomer, and Nicolas Vandewalle
GRASP, Institute of Physics B5a, University of Liège, B4000 Liège, Belgium.

Abstract - Compaction is a popular experiment to measure the bulk density of a granular material as well as its flowability. When a pile of grains is mechanically stressed, one observes the densification of the material as the particles are re-organized. While largely used in pharmaceutical sciences, this physical phenomenon remains difficult to explain. Especially, the dynamics of compaction remain poorly understood. Investigation of the dynamics of compaction depending on the grains properties and shaking conditions are of great interest as the flow properties of granular properties is related to this dynamics.

I. INTRODUCTION

Granular materials are essential in many fields, both scientific and industrial [1]. Due to the wide variety of complex properties of these materials, handling can sometimes be challenging. Indeed granular materials are known to be complex fluids but show solid properties [2, 3]. For this reason, it is of huge importance to be able to correctly describe the rheology of such materials.

There exists a wide variety of measurements to characterize the flowing properties of granular materials [4, 5]. One of them is the Hausner ratio which is well known to be convenient and is largely used in pharmaceutical industries [6]. It is defined as the ratio between the density in the loose configuration of a granular pile and its tapped density $Hr = \frac{\rho_{tap}}{\rho_{loose}}$. This method is however outdated and sorely lacking in physical interpretation. A more physical way consists of obtaining the compaction curve.

When a granular material is mechanically vibrated or tapped, one observes an increase of its density. This phenomenon is called compaction. If the mechanical vibration is periodic, one can measure after each period the packing fraction $\eta = \frac{V}{V_a}$, V being the real volume of the particles constituting the granular medium and V_a being the apparent volume that they effectively take. While compaction has been known for decades, the parameters that control the state and the dynamics of the process remain poorly understood. Indeed, granular compaction is known to be compared to a glassy dynamics [1], meaning long time process and non equilibrium systems. Some empirical laws were developed in order to describe this phenomenon. Knight proposed an inverse logarithmic

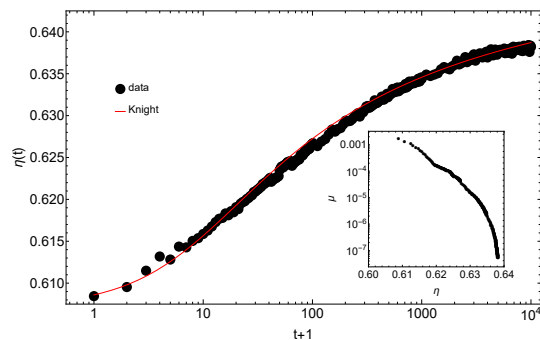


FIG. 1. Packing fraction η as a function of the number of oscillations t in a semi-logarithmic graphic. The example presented by blue dots corresponds to a compaction with $\Gamma = 1.6$ and 50 Hz. The compaction curve is fitted with Eq. (1). The inset shows the decrease of μ as a function of η .

law with three fit parameters [7]

$$\eta(t) = \eta_\infty - \frac{\eta_\infty - \eta_0}{1 + B \ln(1 + t/\tau)}, \quad (1)$$

with η_0 the initial packing fraction, η_∞ the asymptotic packing fraction reached after an infinite number of oscillations t , τ the typical number of oscillations to reach the saturation and B the third fit parameter. The packing fraction evolves from a Random Loose Packing state η_{RLP} , corresponding to η_0 , to a Random Close Packing state η_{RCP} , corresponding to η_∞ . All the values $\eta \in [\eta_{RLP}, \eta_{RCP}]$ are jammed states [8]. The lowest possible value is known to be $\eta_{RLP} \approx 0.55$ [9] while the highest value experimentally reachable is $\eta_{RCP} \approx 0.64$ [10]. One can theoretically reach $\eta_{icc} \approx 0.74$ as most compact structure for monodisperse spheres [11]. This however requires special conditions to crystallize the system in a fcc lattice [12, 13]. One can observe the fit of this law with experimental data in Figure 1. As one can see, this model is able to reproduce the glassy behaviour of the compaction curve.

The interest of Eq. (1) is to extract the typical compaction time τ . Indeed, it has been reported that τ is related to the cohesion of the granular material and then, its flowability [14, 15]. This parameter is consequently of great interest in granular rheology and constitutes a more physical approach than the Hausner ratio, defined as $Hr = \frac{\eta_{tap}}{\eta_0}$, with η_{tap} the packing fraction after a fixed number of oscillations. Nevertheless, the lack of physical understanding of Eq. (1) leads to more investigations.

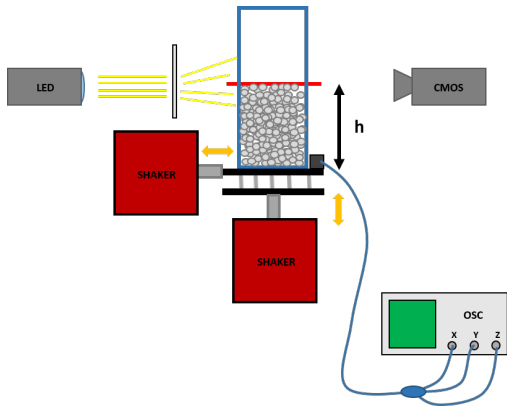


FIG. 2. Experimental setup used for compaction. A glass tube is attached to a plate which has the ability to vibrate in the vertical or in the horizontal direction. An accelerometer measures the acceleration applied on the plate in order to control Γ . A camera takes pictures of the granular pile.

While largely used in pharmaceutical industries, τ and H_r are sometimes difficult to obtain due to the long time needed to reach the saturation of compaction. Since compaction experiments are time-consuming, new measurements that can be obtained faster would be undoubtedly a beneficial improvement. To our knowledge, few works studied the dynamics of compaction at the beginning of the process rather than the whole curve [16, 17]. Interestingly, they showed that this initial dynamics could be used in the same way as the Hausner ratio to characterize powder flow properties [16, 17].

In this work, we propose to investigate the derivative of the compaction curve at the beginning $\mu_0 = \left. \frac{d\eta}{dt} \right|_0$, depending on the shaking conditions. This approach makes sense since the μ decreases with η , as one can see in the inset of Figure 1, meaning that large μ_0 inevitably corresponds to low τ and inversely. Moreover, it was observed in a two dimensional packing that the mobility of grains decreases during the relaxation [18]. The free volume model proposed by Bouteux and de Gennes to obtain Eq. (1) supposes that $\frac{d\eta}{dt} = k\nu$, with ν the mobility of grains [18, 19]. If one assumes that this relation is true, one could link the mobility of grains, and consequently the flowability of the powder, to the derivative of the compaction curve. Moreover, we address the impact of the direction of vibration on compaction. Indeed, the influence of this shaking condition has been little investigated [20–22].

II. METHODS

For each experiment, we used spherical glass beads of about 500 μm of diameter. We performed compaction

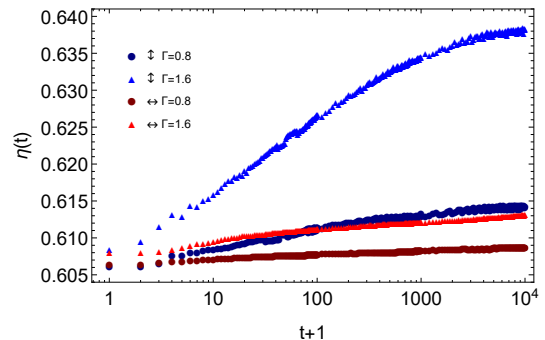


FIG. 3. Compaction curves for vertical, in blue, and horizontal, in red, vibrations for $\Gamma = 0.8$ and $\Gamma = 1.6$. The data are presented in a semi-logarithmic graphic.

in three glass tubes with respectively different aspect ratios $r = \frac{L}{D} = 16.5$, $r = 6.4$ and $r = 1.5$, L being the length of the tube and D its diameter. A sketch of the experimental setup is presented in Figure 2.

We proceeded as follows for each compaction experiment : a narrower steel tube is inserted in the glass tube and slowly removed after pouring the powder in order to initialize the granular pile. The glass tube is fixed on a plate which has the ability to vibrate vertically or horizontally. The granular column is back lighted and a camera takes a picture of the front line, at the top of the pile, after each oscillation. In order to avoid a huge number of images to analyse, the frequency of the image capture is divided by 10 after the 100 first oscillations and after each magnitude order. After initialization of the granular pile, we applied a sinusoidal vibration in the vertical or horizontal direction for various frequencies $f \in [30 \text{ Hz}, 500 \text{ Hz}]$ and reduced accelerations $\frac{2\pi f A}{g} = \Gamma \in [0.6, 3.0]$, where A is the amplitude of oscillation and g the gravitational acceleration.

From each picture, the granular height h is measured and, knowing the mass m of the granular material, D the tube diameter and the density of glass $\rho \approx 2500 \text{ kg/m}^3$, one can compute the packing fraction $\eta = \frac{4m}{\pi D^2 \rho h}$. For each compaction process, 10^4 oscillations were performed. The initial dynamics of compaction μ_0 is measured with a linear regression on the first ten points of each compaction curve. This number of points was chosen in order to guarantee a linear evolution of $\eta(t)$ but with enough data to have a good fit.

III. RESULTS

Figure 3 presents the compaction curves for vertical, in blue, and horizontal, in red, oscillations. One observes the typical "s" shaped compaction curve in the semi-logarithmic graphic. One can remark that higher saturation

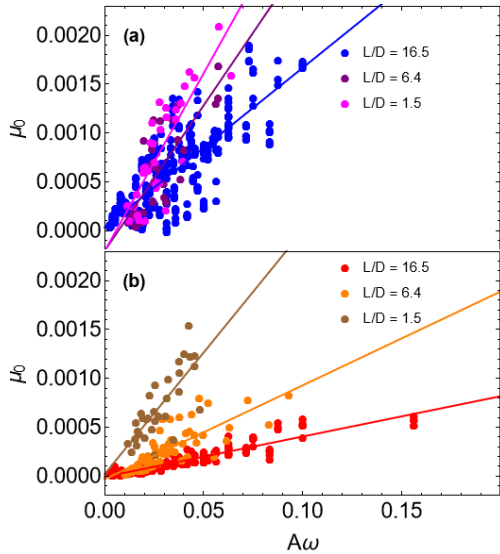


FIG. 4. Initial dynamics of compaction μ_0 for vertical (a) and horizontal (b) cases as a function of the oscillation speed $A\omega$. Guideline of the same color are presented to show the linear behaviours of the dots cloud.

tions values η_∞ are obtained when larger acceleration Γ are used. Below $\Gamma = 0.6$ no compaction was observed because the mechanical stress was insufficient to move the grains. It has been shown that the asymptotic packing fraction decreases as Γ increases [23–25]. This result is however valid in the reversible branch of η_∞ as a function of the acceleration, when $\Gamma > \Gamma_c$. The value Γ_c is known to be larger than unity and seems to depend on the device. It is assumed to be the critical acceleration above which particles take off [26]. In our case, we suppose that we are in the irreversible branch, in agreement with the increase of η_∞ when Γ increases.

One remarks that vertical vibrations give larger η_∞ than horizontal ones, even for low Γ . It seems that vertical oscillations are globally more efficient than horizontal ones. One could suppose that in the vertical case, particles are advantaged by the free fall during the falling part of the oscillation. During this phase, the particles are less constrained since the contact forces between grains are artificially decreased by the fall. Their respective motion can be facilitated, which increases the accessible final packing fraction. In the horizontal case, this free fall is absent and the stress due to the weight of granular pile is constant during oscillations.

We measured μ_0 under vertical or horizontal sinusoidal vibrations for various accelerations Γ and frequency f . We observed that the initial dynamics follow the linear relation $\mu_0 \simeq A\omega$ for moderate accelerations, with $\omega = 2\pi f$. In Figure 4 is presented μ_0 as a function of $A\omega$. This

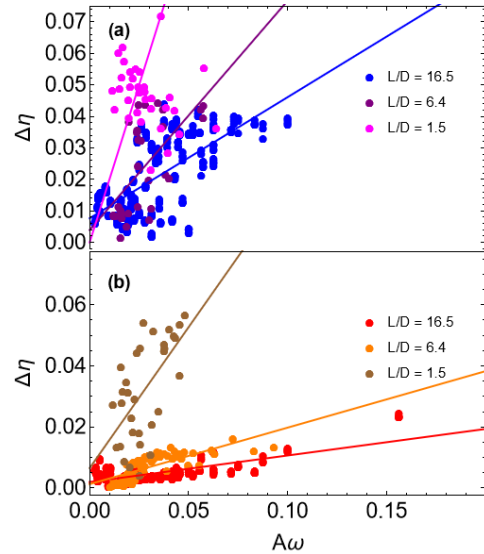


FIG. 5. Amplitude of compaction $\Delta\eta$ for vertical (a) and horizontal (b) cases as a function of the oscillation speed $A\omega$. Guideline of the same color are presented to show the linear behaviours of the dots cloud.

result seems similar to observations in a previous work [25], where speed of oscillations was known to rescale the data. Moreover, another study found that compaction curves can be rescaled by the energy of oscillation [27], which can be related to $(A\omega)^2$. One observes that for long and thin tubes, the dynamics is globally higher for the vertical case than for the horizontal case. Interestingly, the dynamics increases when $\frac{L}{D}$ decreases. This effect is more pronounced for the horizontal case.

Moreover, we observed that the amplitude of compaction $\Delta\eta = \eta_\infty - \eta_0$ also vary with $\frac{L}{D}$. The asymptotic packing fraction η_∞ was obtained by fitting the compaction curves with Eq. (1). In order to limit the number of free parameters, we fixed $B = 1$. Figure 5 shows the amplitude of compaction as a function of $A\omega$ for different tube ratios. One observes that $\Delta\eta$ decreases with $\frac{L}{D}$. As for the dynamics μ_0 , this effect is more pronounced for the horizontal case. The amplitude of compaction seems also to depend linearly on $A\omega$.

IV. DISCUSSION

It seems that both μ_0 and $\Delta\eta$ are dependent on $A\omega$ but the results obtained are different for different tubes. The aspect of the compaction cell consequently affects the measurement. As μ_0 and $\Delta\eta$ both decrease with $\frac{L}{D}$, we propose to rescale the data by $\frac{\mu_0}{\Delta\eta}$. As one can see in Figure 6, data collapse together. One can link $\frac{\mu_0}{\Delta\eta}$ with

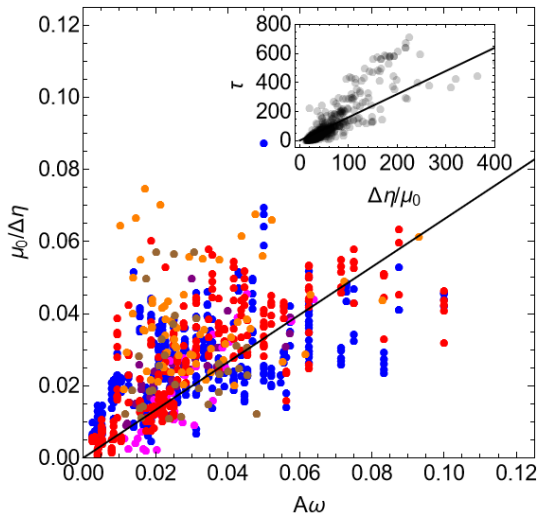


FIG. 6. Ratio $\frac{\mu_0}{\Delta\eta}$ as a function of $A\omega$. The inset presents the correlation between τ and $\frac{\Delta\eta}{\mu_0}$. The black curves are guidelines for eyes.

the typical compaction time τ . One has by deriving Eq. (1)

$$\frac{d\eta}{dt} = \frac{B}{\tau} \frac{1}{1 + \frac{t}{\tau}} \frac{(\eta_\infty - \eta)^2}{\eta_\infty - \eta_0}. \quad (2)$$

Since we measured the initial dynamics of compaction μ_0 one has to take the limit $t \rightarrow 0$ for Eq. (2). One consequently has

$$\mu_0 \simeq B \frac{\eta_\infty - \eta_0}{\tau}. \quad (3)$$

Based on Eq. (1), the typical compaction time follows $\tau \propto \frac{\Delta\eta}{\mu_0}$. The inset of Figure 6 shows τ as a function of

$\frac{\Delta\eta}{\mu_0}$. The typical compaction time τ seems effectively to be correlated to the ratio $\frac{\Delta\eta}{\mu_0}$.

This result suggests that τ is independent on the ratio $\frac{L}{D}$ of the cell. Moreover, it could legitimize the use of τ for powder flowability characterization. According to the supposition of Boutreux and de Gennes, the initial packing dynamics μ_0 is related to the mobility of grains ν by $\frac{d\eta}{dt} = k\nu$, with k a constant [19]. Moreover, Lumay *et al.* observed that the mobility ν decreases in a similar way that the one observed for $\mu = \frac{d\eta}{dt}$ in Figure 1 [18]. As τ is related to μ_0 , one can make the link between the typical compaction time and the mobility of grains which tunes the flow of the granular material.

V. CONCLUSION

Under the assumption that the initial speed of compaction μ_0 is related to the mobility of grains ν , this result could validate the use of τ to characterize the powder flowability. On the other hand, as the compaction process is time-consuming, one could use μ_0 instead of τ as powder dynamics characterization. The initial dynamics was effectively used in recent works [16, 17] and showed good agreements with the Hausner ratio Hr.

We showed that the amplitude of compaction $\Delta\eta$ and the initial dynamics μ_0 depend on the oscillation speed $A\omega$. This result is consistent with previous works [25, 27] and suggests that the energy $\Xi \propto A^2\omega^2$ provided by the oscillations controls the compaction process. Both $\Delta\eta$ and μ_0 depend on the ratio $\frac{L}{D}$. It seems that vertical vibrations are more efficient for $\frac{L}{D} \gg 1$. However, the dynamics and the amplitude of compaction are quite equivalent with vertical or horizontal vibrations when $\frac{L}{D} \rightarrow 1$. This result could help to choose the right shaking conditions depending on the cell configuration.

Acknowledgments – This study is conducted in the framework of the "PowderReg" project, funded by the European programme Interreg VA GR within the priority axis 4 "Strengthen the competitiveness and the attractiveness of the Grande Région / Großregion".

-
- [1] B Andreotti, Y. Forterre and O. Pouliquen, *Les milieux granulaires : entre fluide et solide*, (CNRS, Paris, 2011).
 - [2] H. M. Jaeger, S. R. Nagel and R. P. Behringer, *Granular solids, liquids, and gases*, Rev. Mod. Phys. **68**, 1259 (1996).
 - [3] Y. Forterre and O. Pouliquen, *Flows of dense granular media*, Annu. Rev. Fluid Mech. **40**, 1-24 (2008).
 - [4] F. Boschini, V. Delaval, K. Traina, N. Vandewalle and G. Lumay, *Linking flowability and granulometry of lactose powders*, Int. J. Pharm. **494**, 312-320 (2015).
 - [5] G. Lumay, F. Boschini, K. Traina, S. Bontempi, J. C. Remy, R. Cloots and N. Vandewalle, *Measuring the flowing properties of powders and grains*, Powder Technol. **224**, 19-27 (2012).
 - [6] A. Saker, M. G. Cares-Pacheco, P. Marchal and V. Falk, *Powders flowability assessment in granular compaction: What about the consistency of Hausner ratio?*, Powder Technol. **354**, 52-63 (2019).
 - [7] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Density relaxation in a vibrated granular material*, Phys. Rev. E **51**, 3957 (1995).
 - [8] C. Song, P. Wang and H. A. Makse, *A phase diagram for jammed matter*, Nature **453**, 629-632 (2008).
 - [9] G. Y. Onoda and E. G. Liniger, *Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2727 (1990).
 - [10] J. G. Berryman, *Random close packing of hard spheres and disks*, Phys. Rev. A **27**, 1053 (1983).

- [11] D. Weaire and T. Aste, *The pursuit of perfect packing*, (CRC Press, New York, 2008).
- [12] O. Carvente and J. C. Ruiz-Suárez, *Crystallization of confined non-brownian spheres by vibrational annealing*, Phys. Rev. Lett. **95**, 018001 (2005).
- [13] A. Panaitescu, K. A. Reddy and A. Kudrolli, *Nucleation and crystal growth in sheared granular sphere packings*, Phys. Rev. Lett. **108**, 108001 (2012).
- [14] G. Lumay, N. Vandewalle, C. Bodson, L. Delattre and O. Gerasimov, *Linking compaction dynamics to the flow properties of powders*, Appl. Phys. Lett. **89**, 093505 (2006).
- [15] K. Traina, R. Cloots, S. Bontempi, G. Lumay, N. Vandewalle, and F. Boschini, *Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement*, Powder Technol. **235**, 842–852 (2013).
- [16] A. Neveu, F. Francqui and G. Lumay, *Packing dynamics of powders at high temperature*, EPJ Web of Conferences **249**, 12001 (2021).
- [17] G. Lumay, F. Francqui, C. Detrembleur and N. Vandewalle, *Influence of temperature on the packing dynamics of polymer powders*, Adv. Powder Technol. **31**, 4428–4435 (2020).
- [18] G. Lumay and N. Vandewalle, *Experimental study of granular compaction dynamics at different scales: grain mobility, hexagonal domains, and packing fraction*, Phys. Rev. Lett. **95**, 028002 (2005).
- [19] T. Boutreux and P. G. de Gennes, *Compaction of granular mixtures: a free volume model*, Physica A **244**, 59–67 (1997).
- [20] X. Z. An, C. X. Li, R. Y. Yang, R. P. Zou and A. B. Yu, *Experimental study of the packing of mono-sized spheres subjected to one-dimensional vibration*, Powder Technol. **196**, 50–55 (2009).
- [21] X. An and C. Li, *Experiments on densifying packing of equal spheres by two-dimensional vibration*, Particuology **11**, 689–694 (2013).
- [22] C. X. Li, X. Z. An, R. Y. Yang, R. P. Zou and A. B. Yu, *Experimental study on the packing of uniform spheres under three-dimensional vibration*, Powder Technol. **208**, 617–622 (2011).
- [23] E. R. Nowak, J. B. Knight, M. L. Povinelli, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Reversibility and irreversibility in the packing of vibrated granular material*, Powder Technol. **94**, 79–83 (1997).
- [24] P. Ribiere, P. Richard, P. Philippe, D. Bideau and R. Delannay, *On the existence of stationary states during granular compaction*, Eur. Phys. J. E **22**, 249–253 (2007).
- [25] J. A. Dijksman and M. van Hecke, *The role of tap duration for the steady-state density of vibrated granular media*, EPL **88**, 44001 (2009).
- [26] P. Philippe and D. Bideau, *Granular medium under vertical tapping: Change of compaction and convection dynamics around the liftoff threshold*, Phys. Rev. Lett. **91**, 104302 (2003).
- [27] F. Ludewig, S. Dorbolo, T. Gilet and N. Vandewalle, *Energetic approach for the characterization of taps in granular compaction*, EPL **84**, 44001 (2008).

Chapitre 4

Systèmes bidisperses

4.1 Problématique

La polydispersité d'un milieu granulaire peut être un avantage ou un inconvénient suivant les applications. Une légère différence de tailles empêche un empilement de sphères de cristalliser [100, 101]. Au contraire, lorsqu'on mélange des particules suffisamment petites dans le milieu poreux généré par des plus grandes, la compacité augmente. L'espace vide peut en théorie être indéfiniment rempli avec des particules de plus en plus petites comme l'a décrit Apollonius [80].

Le cas des mélanges binaires, c'est-à-dire composés de deux tailles de particules, est tout particulièrement important car il a été énormément étudié afin de prédire l'optimum de compacité [102–107]. En revanche, la dynamique de tels mélanges a été moins travaillée [92, 93]. Nous pensons donc qu'il est d'un grand intérêt de connaître la manière dont la compacité et la dynamique de compaction évoluent dans les milieux bidisperses. Dans les deux articles suivants, nous montrons des résultats que nous avons obtenus sur la compacité et la dynamique de compaction pour des systèmes bidisperses de sphères. De plus, nous proposons un modèle pour prédire la compacité de ces mélanges en fonction de différents paramètres de contrôle.

4.2 Expérience

Pour cette étude sur l'impact d'un mélange de deux tailles de grains, nous avons utilisé un second dispositif expérimental automatisé en raison de la grande quantité de mesures à prendre. Nous avons utilisé le GranuPack, dont un schéma est présenté sur la Figure 4.1. Ce dispositif est constitué d'un tube en métal de 26 mm de diamètre et 100 mm de long dans lequel est inséré un second tube plus étroit ouvert des deux côtés. Le matériau granulaire à compacter est versé dans le second tube qui est ensuite doucement enlevé à la vitesse de 1 mm/s pour initialiser l'empilement granulaire. Ce protocole permet d'avoir une compacité reproductible, limitant l'intervention humaine. Une fois le second tube d'initialisation enlevé, un diabolo est placé sur le dessus de la pile granulaire afin d'aplanir la surface. Ce diabolo est détecté par un capteur de distance afin de connaître la hauteur de la pile et en déduire la compacité. Le tube effectue des chutes libres successives de $\Delta z = 1$ mm à chaque seconde pour compacter le matériaux. Après chaque chute libre, ou "secousse", la compacité est mesurée et enregistrée. Un protocole identique est utilisé dans les chapitres qui suivent.

Pour composer les différents mélanges granulaires avec des billes de verre allant de 69 μm

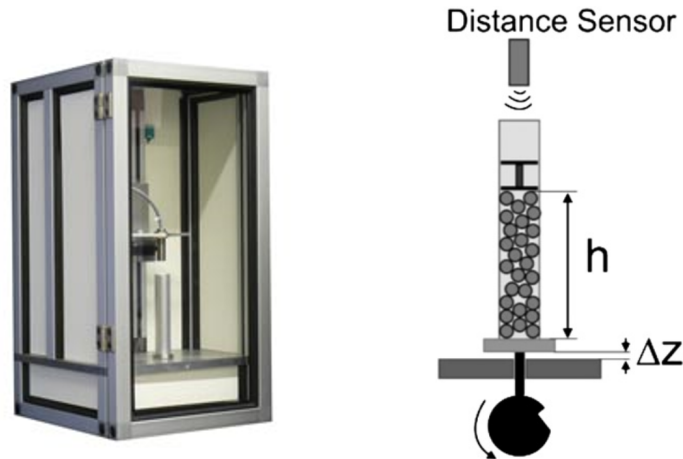


FIGURE 4.1 – (gauche) Image du dispositif GranuPack. (droite) Schéma du fonctionnement du GranuPack. Le détecteur de distance permet, après calibration, de déterminer la hauteur h de l'empilement granulaire. Une roue crantée engendre un mouvement de haut en bas qui permet de créer les successions de chutes libres d'une hauteur fixe Δz .

à $3455 \mu\text{m}$, nous avons déterminé deux paramètres de contrôle. Le premier est la fraction volumique de petites billes dans le système. Elle est définie par

$$f = \frac{V_s}{V_s + V_l}, \quad (4.1)$$

avec V_s et V_l respectivement le volume réel des petites et grandes billes. Le volume réel total de billes vaut donc $V = V_s + V_l$. Au plus f augmente au plus le système est dominé par les petites particules comme illustré sur la Figure 4.2. Le second paramètre de contrôle est le rapport de tailles α que nous définissons comme

$$\alpha = \frac{R_l}{R_s}, \quad (4.2)$$

avec R_l le rayon des grandes particules et R_s celui des petites.

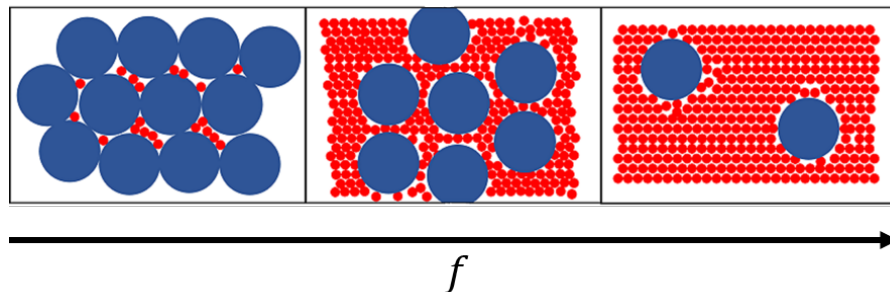


FIGURE 4.2 – Représentation de la fraction volumique des petites billes. On observe que l'aspect de l'empilement évolue à mesure que f augmente et que les petites particules deviennent dominantes dans le mélange.

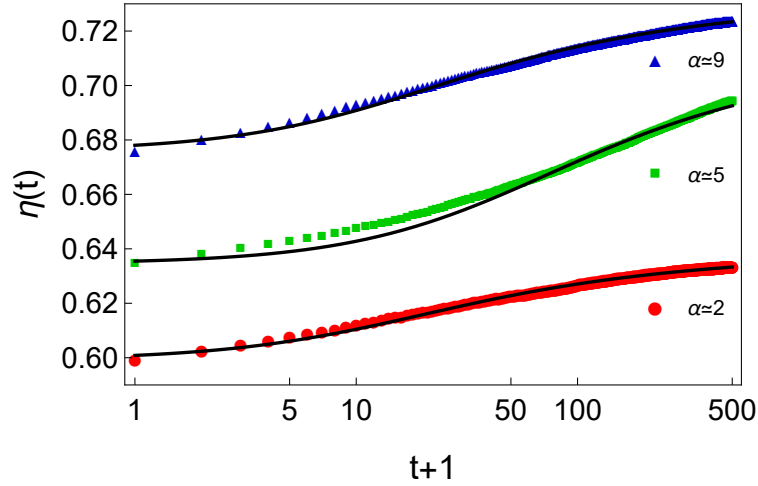


FIGURE 4.3 – Courbes de compaction typiques $\eta(t)$ dans une échelle semi-logarithmique. Trois rapports de tailles α différents sont montrés pour une composition identique $f = 0.20$. Les courbes noires correspondent à l’ajustement réalisé avec l’équation (2.2).

Pour de nombreux couples de paramètres f et α , nous avons utilisé le GranuPack et obtenu des courbes de compaction. La Figure 4.3 montre trois exemples de courbes de compaction. Il est visible que, suivant α , les résultats sont très différents. En ajustant la courbe de compaction de chaque mélange avec l’équation (2.2), nous avons extrait les deux paramètres d’ajustement η_∞ et τ . Le dernier paramètre est fixé à $B = 1$ pour limiter la liberté d’ajustement. En effet, un paramètre B libre mène à une trop grande variabilité de τ .

4.3 Résultats principaux

Comme bon nombre de travaux avant nous, la compacité η_∞ est étudiée en fonction de la fraction volumique de petites billes f et du rapport de tailles α . La fraction volumique de petites particules varie entre 0 et 1 pour une large gamme de rapports de tailles $\alpha \in [2, 50]$. La Figure 4.4 présente η_∞ en fonction de f pour $\alpha \approx 3$, $\alpha \approx 5$ et $\alpha \approx 9$. Nous ajoutons à nos résultats des données expérimentales provenant d’autres études [103,107,108]. Comme la compacité initiale peut être différente d’un dispositif expérimental à l’autre, nous renormalisons toutes les données par η_0 .

La courbe typique de η_∞ en fonction de f commence par une croissance jusqu’à un optimum, puis décroît. L’amplitude de cette courbe dépend fortement du rapport de tailles α . De fait, toutes les données d’un même rapport de tailles se regroupent sur une courbe maîtresse. En outre, il faut souligner le fait que ces différentes données sont obtenues pour des tailles de billes très variées et des protocoles différents. Ce résultat souligne la grande influence de α sur le système et le désigne comme un paramètre de contrôle consistant. Il est d’autant plus important qu’il sera très utile dans les chapitres suivants mais également pour décrire la dynamique de compaction. En effet, nous avons étudié l’évolution de τ en fonction de f et α . Nous observons que τ évolue avec f et que les courbes obtenues sont fortement dépendantes de α . Comme le montre le petit graphique de la Figure 4.5, de fortes variations de τ sont visibles aux abords de $f = 0.20$. Une divergence de τ en fonction de α

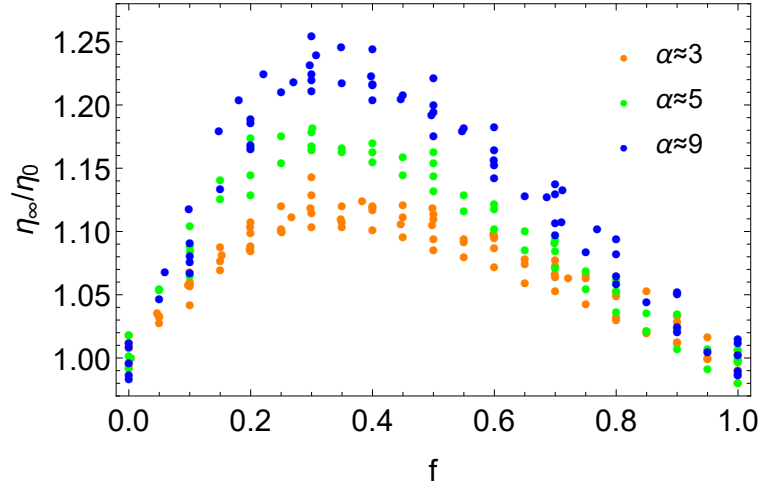


FIGURE 4.4 – Compacité en fonction de f pour trois rapports de tailles $\alpha \approx 3$, $\alpha \approx 5$ et $\alpha \approx 9$. Les résultats d'autres travaux [103, 107, 108] ayant les mêmes rapports de tailles sont rajoutés aux nôtres. Les données ayant le même rapport de tailles se regroupent sur la même courbe. Les fluctuations autour de cette courbe peuvent être dues au dispositif expérimental ou la nature même des particules.

apparaît proche de la limite $\alpha_* \approx 5.5$. Cette limite est obtenue par un ajustement avec une loi empirique du type

$$\tau(\alpha) - \tau(1) \propto (\alpha_* - \alpha)^{-\gamma}, \quad \alpha < \alpha_*, \quad (4.3)$$

$$\tau(\alpha) - \tau(\infty) \propto (\alpha - \alpha_*)^{-\gamma'}, \quad \alpha > \alpha_*, \quad (4.4)$$

γ et γ' étant des paramètres d'ajustement. Cette divergence rappelle des résultats similaires obtenus numériquement [102, 109, 110]. Si R_s est la proportion de petites billes coincées, on définit la "susceptibilité de blocage" $\chi_{R_s} = \left(\frac{\partial R_s}{\partial f}\right)$. Cette valeur peut être interprétée comme la capacité du système à se bloquer. La Figure 4.5 montre la divergence de cette quantité avec α pour $f = 0.20$. Prasad *et al.* obtient que la divergence apparaît pour $\alpha_* \approx 5.75$, proche de notre valeur. Il lie cette valeur à la limite de percolation $\alpha_p = 3 + \sqrt{12} \approx 6.46$. D'autres travaux mettent également en évidence une divergence de fraction de billes bloquées aux alentours de $f = 0.20$ [109, 110]. Il est donc intéressant de faire le parallèle entre cette mesure, à l'échelle microscopique, avec notre mesure, à l'échelle macroscopique. Le temps de compaction τ pourrait être vu comme une mesure du "blocage" des particules puisqu'il est lié à la coulabilité, et donc à la liberté de mouvement des particules.

4.4 Modélisation de mélanges

Comme nous venons de le voir, le rapport de tailles entre les particules a une grande influence sur la compacité. Cependant, le modèle de Furnas, initialement développé pour prédire la compacité d'un système binaire, ne tient pas compte de ce rapport et surestime cette compacité, comme nous l'avons souligné dans le Chapitre 2. De plus, la ségrégation granulaire influe fortement sur la compacité. Comme ce phénomène apparaît souvent dans les mélanges granulaires, et donc également lors d'expériences de compaction, il est crucial d'en

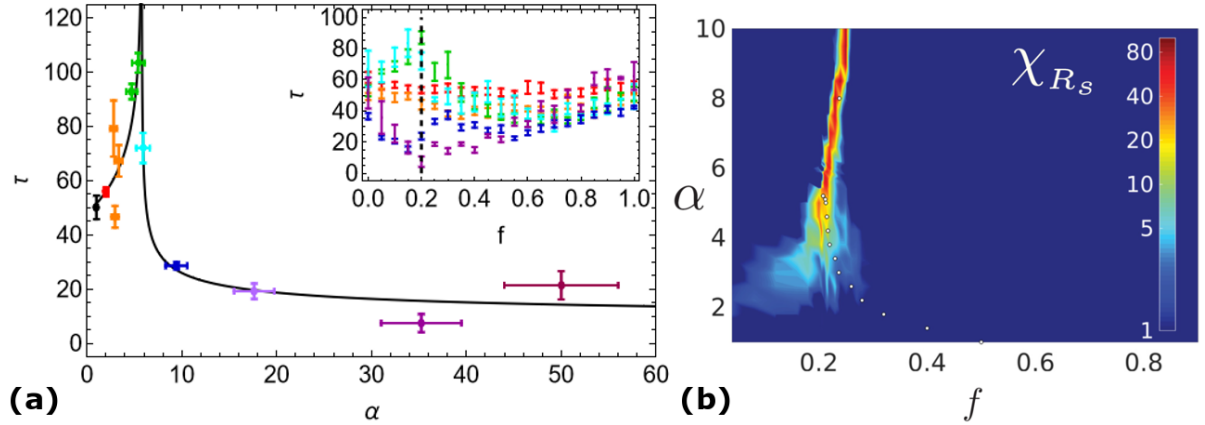


FIGURE 4.5 – (gauche) Temps typique de compaction τ en fonction du rapport de tailles α . Les données sont prises là où les plus fortes variations sont observées, en $f = 0.20$. Les courbes noires sont des guides pour les yeux et correspondent aux équations (4.3) et (4.4). (petit graphique) Temps typique de compaction τ en fonction de la fraction volumique f pour différents rapports de tailles. La ligne pointillée indique la zone où τ varie fortement. (droite) Susceptibilité χ_{R_s} , mesuré par Prasad *et al.*, en fonction de f et α . Le rapport de tailles α et la fraction de petites billes f sont définis de la même manière que dans ce manuscrit. Image issue de [102].

tenir compte. Pour ces raisons, nous avons développé un modèle qui prédit la compacité d'un mélange binaire, tenant compte du rapport de tailles α et de l'inhomogénéité du système et de la fraction de petites particules f .

Contrairement au modèle de Furnas, le volume apparent V_a n'est pas supposé homogène dans toute la cellule. On définit le volume apparent local V_a^{loc} tel que

$$V_a = \int_{V^*} V_a^{loc}(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3, \quad (4.5)$$

avec V^* un volume unitaire tel que les bornes d'intégration des trois intégrales sont $[0, 1]$. L'hétérogénéité du système est décrite par Ψ_l et Ψ_s , respectivement les distributions des grandes et des petites particules qui respectent la contrainte

$$\int_{V^*} \Psi_l(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3 = \int_{V^*} \Psi_s(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3 = 1. \quad (4.6)$$

Nous basons sur l'approche de Furnas en considérant également deux cas extrêmes : (I) lorsque le mélange est dominé par les grosses particules, et (II) quand il est dominé par les petites. Chaque contribution volumique est considérée à une échelle locale et la phase dominante va autant dépendre de la fraction f que de la position \mathbf{r} dans le mélange.

En considérant des fonctions simples pour les distributions, le modèle est capable de reproduire le comportement des données expérimentales. En outre, il nous permet de comprendre et d'interpréter physiquement certains comportements des courbes. En effet, un optimum arrondi peut être obtenu avec une distribution en forme de gradient pour les petites particules. Le détail de ce résultat est discuté dans les articles qui suivent. Dans le cas de distributions homogènes, on observe plutôt un pic pour la valeur maximale de η , comme c'est le cas dans le modèle de Furnas.

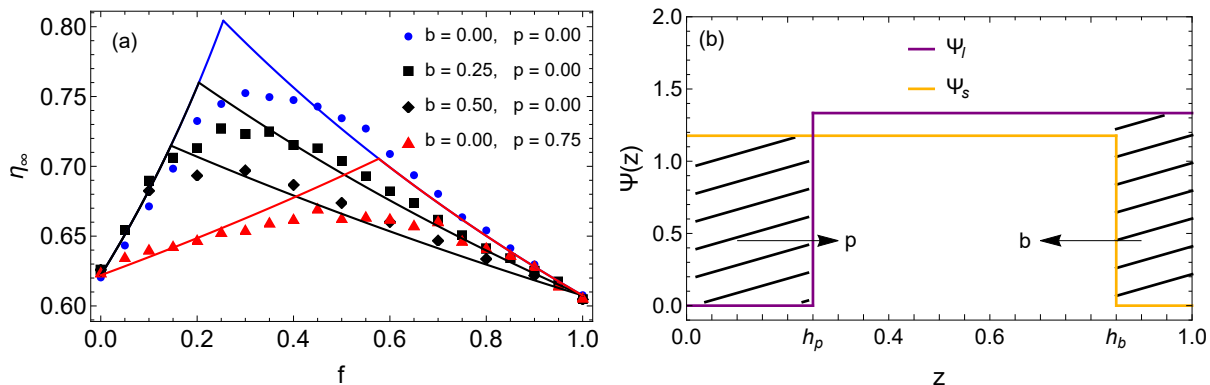


FIGURE 4.6 – (a) Compacité η_∞ en fonction de la fraction volumique des petites particules f pour différents paramètres de ségrégation p et b . (b) Distributions Ψ_l et Ψ_s modélisant la ségrégation des petites et grandes particules dans une phase monodisperse. Les zones hachurées représentent l'intégrale sous la courbe, symbolisant les proportions de grandes particules b et de petites particules p séparées dans des phases monodisperses distinctes.

Il est également possible de mettre en avant l'effet d'une ségrégation où les deux espèces se séparent en créant des phases monodisperses. Dans ce cas, le modèle peut être simplifié et les proportions p et b de petites et grandes particules, séparées dans deux phases monodisperses, peuvent être directement utilisées. On a

$$\eta_\psi(f) = \frac{V}{\max\{V_I, V_{II}\}}, \quad (4.7)$$

avec

$$V_I = \left[\frac{1-f}{\eta_l} + \frac{f}{\eta_s} \left(p + \frac{1-p}{\alpha} \right) \right] V \quad (4.8)$$

et

$$V_{II} = \left(\frac{f}{\eta_s} + \frac{1-f}{\eta_l} \left[b + (1-b)\eta_l \left(1 + \frac{1}{\alpha} \right) \right] \right) V. \quad (4.9)$$

Nous attirons l'attention sur les équations (4.8) et (4.9), pour lesquelles p n'a d'effet que sur la partie de gauche du modèle, V_I , tandis que b n'a d'effet que sur la partie de droite, V_{II} . Nous constatons d'ailleurs l'adéquation de ce résultat avec l'expérience sur la Figure 4.6 (a) où la ségrégation a été forcée. Dans ce cas, les proportions p et b sont connues et sont directement utilisées dans le modèle. Une légère erreur peut exister sur ces paramètres en raison de la ségrégation naturelle qui s'ajoute lors de la préparation du mélange et durant le processus de compaction. Le modèle est en très bon accord avec l'expérience, en modélisant Ψ_l et Ψ_s comme des fonctions en marche d'escalier, représentées sur la Figure 4.6 (b).

4.5 Résumé

Nous avons, dans cette partie, mis en évidence l'importance des paramètres de contrôle α et f ainsi que l'effet de la ségrégation sur le système. Nous avons montré que la compacité et la dynamique de compaction sont intimement liées au rapport de tailles α entre les particules. Nous avons découvert l'existence d'une divergence du temps de compaction τ

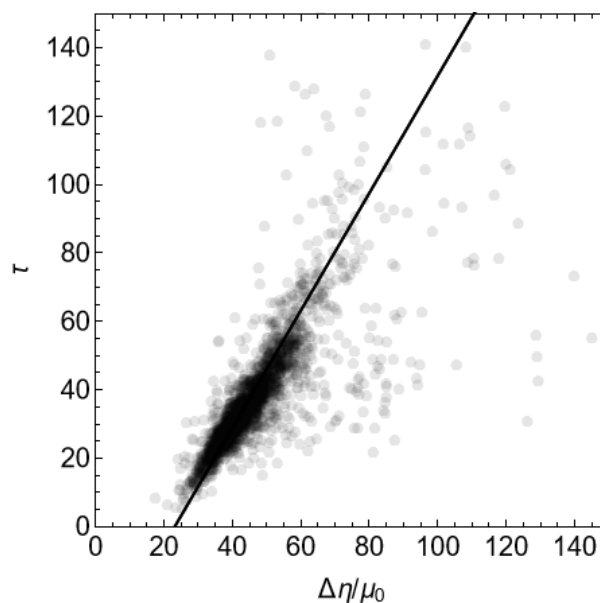


FIGURE 4.7 – Corrélation entre τ et $\Delta\eta/\mu_0$ pour les mélanges binaires. La ligne noire est un guide pour l’œil. Les points sont légèrement translucides. Les zones plus foncées correspondent à des résultats plus fréquents.

à l’approche du rapport de tailles $\alpha_* \approx 5.5$, proche du seuil de percolation $\alpha_p \approx 6.46$ des petites particules dans les interstices laissés par les grandes particules. Ce comportement est similaire à ce qui peut être observé dans des simulations numériques, proche de $f = 0.2$. Nous avons également développé un modèle pour la compacité en fonction des paramètres de contrôle f , α et l’hétérogénéité du mélange.

Remarquons que les données prises avec le GranuPack suivent également la loi $\tau \propto \Delta\eta/\mu_0$. Il semble que ce lien de proportionnalité soit inhérent au phénomène de compaction, indépendamment de la méthode de compaction. En effet, le GranuPack utilise plutôt des secousses tandis qu’une oscillation sinusoïdale est utilisée dans le chapitre précédent.

SCIENTIFIC REPORTS

OPEN

From jamming to fast compaction dynamics in granular binary mixtures

Salvatore Pillitteri, Geoffroy Lumay, Eric Opsomer & Nicolas Vandewalle

Received: 11 January 2019
 Accepted: 2 April 2019
 Published online: 13 May 2019

Binary granular mixtures are known to show various packing arrangements depending on both fractions and size ratios of their components. While the final packing fraction can be estimated by geometrical arguments, the dynamics of the pile submitted to gentle vibrations towards a dense state is seen to be highly size ratio dependent. We observe experimentally a diverging compaction characteristic time close to a critical size ratio, such that the grain mobility in the packing is the lowest close to the percolation threshold, when small particles can pass through the voids left by the large ones. Moreover, we evidence a fast compaction dynamics regime when the grain size ratio is large enough.

How a large number of identical spherical objects can fill a box is one of the most persistent problems in mathematics and science^{1–5}. The packing fraction η , defined as the volume of all particles divided by the apparent volume of the assembly, has a maximum value $\eta_{fcc} = \pi/3\sqrt{2} \simeq 0.74$, corresponding to the face-centered cubic (fcc) lattice. A random jammed packing reaches at most $\eta_{RCP} \simeq 0.64$ (Random Close Packing) while the lowest values of a mechanically stable assembly are found around $\eta_{RLP} \simeq 0.60$ (Random Loose Packing) in earth gravity conditions^{6–8}. In microgravity, this lowest bound decreases to $\eta_{RLP} \simeq 0.55$ ⁹. Those values of the volume fraction are still under investigation because the link between η and how spheres are arranged is poorly known^{7,8}.

Above η_{RCP} , sphere ordering should take place. Works^{10–12} have reported that crystallization of a sphere packing could be obtained in particular conditions. In two dimensions, the crystallization could be obtained¹⁰ by compaction, i.e. by gently shaking the system. Crystallization becomes the driving process for granular compaction and crystal growth describes successfully the laws of compaction. The three dimensional problem is more complex. Works suggest that tetrahedral structures are formed being nuclei for the growth of denser regions¹². Moreover, crystallization can be obtained either by vibrating the system^{13,14} or by applying shear cycles¹⁵.

Considering granular mixtures instead of identical spherical grains lead to higher packing fractions, such that the particle size composition becomes relevant. Empirical^{16–18} and numerical^{19–23} studies have been proposed. A recent numerical study²⁴ considered the case of granular mixtures made of grains of different sizes. This study suggested that the size ratio and the mixture composition are major parameters determining the packing fraction. Moreover, by looking at the fraction of rattling particles being a property only accessible in numerical simulations, they evidenced sharp jamming transitions when varying the mixture parameters. Such jamming transition²⁵ was not experimentally reported at our knowledge and will be the focus of this paper.

Typical pictures of granular mixtures made of glass beads with different sizes and compositions are shown in Fig. 1. While the composition and bead sizes are varied, the total mass is kept constant. Since different heights are observed, one suspects different packing fractions. As suggested in a pioneering work²⁶, two extreme cases can be considered for binary mixtures made of small and large beads. In the first row of Fig. 1, the fraction of large beads is high such that they form a network where small beads occupy the voids left by the large ones. When the size ratio is large enough, tiny grains may percolate in the voids left by the large beads. On the contrary, when the fraction of tiny particles increases, as seen in the bottom row of Fig. 1, the global packing fraction is mostly dominated by small grains around large occupied volumes. The large beads are isolated in a bed of small beads. One understands that both extreme cases lead to different types of packing.

Our motivation is to analyze the dynamics of those systems by measuring compaction curves of real binary mixtures. For reaching that goal, we have done an extensive experimental study by considering both mixture compositions and size ratios. We evidence how granular mixtures affects compaction dynamics, i.e. affects the ability of the assembly to rearrange its own structure.

Results

Binary mixtures of glass beads having various diameters d from 98 μm to 3455 μm have been considered in order to vary the size ratio

GRASP, Physics Department B5a, University of Liège, B-4000, Liège, Belgium. Correspondence and requests for materials should be addressed to S.P. (email: s.pillitteri@uliege.be)

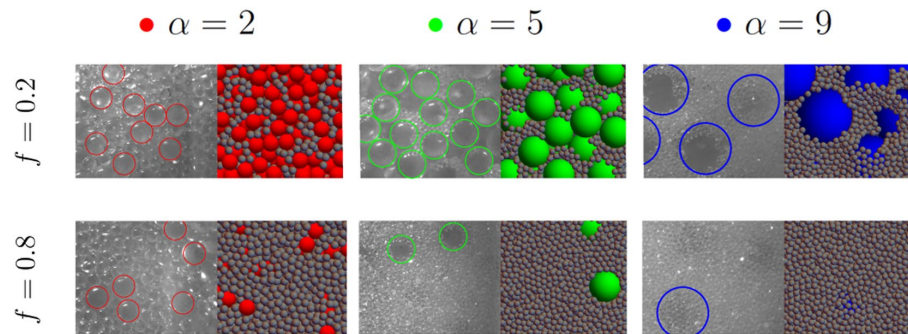


Figure 1. Pictures and numerical simulations of two extreme cases encountered with binary mixtures and for three different size ratios. The colored circles are guides to detect the large beads in the mixture. (top row) When the fraction f of small particles is low, they fill the voids between large beads. When the size ratio α is large enough, they may percolate into this voids. The packing of large beads is broken and restructured by small ones. (bottom row) When f is large, small particles dominate the packing since large beads can be seen as solid bodies entirely surrounded by small particles.

$$\alpha = \frac{d_l}{d_s}, \tag{1}$$

which is always larger than unity, since d_l and d_s are the diameters of large and small beads respectively. In this work, we vary α between 1 to 35. Since our glass beads have a small polydispersity around 6%, the size ratio is known with a relative error of 12%. It should be noted that above $\alpha_c = 3 + \sqrt{12} \simeq 6.46$ the small beads can pass through the voids left by the large beads, as demonstrated by Descartes²⁷ for an ordered structure. For a disordered packing, this percolation threshold should be significantly smaller than α_c as we will see in this work.

In order to characterize the binary mixture, the volume fraction f of small beads in the mixture is considered. It is defined as

$$f = \frac{V_s}{V_s + V_l}. \tag{2}$$

which has been varied from 0 to 1 by steps of 0.05. For each series of experiments, a binary mixture is placed in the tube of the instrument GranuPack and the packing fraction is measured during the 500 first steps of compaction. We extract therefore $\eta(t)$. For each composition, experiments have been realized 10 times. A large number of independent experiments have therefore been performed with a constant air Relative Humidity $RH = 30 \pm 5\%$ in the laboratory.

Figure 2 presents three typical curves of compaction dynamics for three size ratios α at the same composition $f = 0.20$, corresponding to the conditions of Fig. 1 (top row). The log scale for the horizontal axis is used for emphasizing the slow (glassy-like) dynamical behavior of granular materials. Nevertheless, one observes quite different behaviors. Indeed, three different initial packing fractions are obtained in the range $\eta = 0.60$ and $\eta = 0.72$. The latter value is similar to the packing fraction obtained for non-spherical grains²⁸. Moreover, one observes different compaction dynamics: while the saturation of η seem to be nearly reached for two curves ($\alpha = 2$ and $\alpha = 9$), the third one is still slowly growing after 500 taps ($\alpha = 5$). Finally, one observes that three different final packing fraction values were reached after 500 taps. High packing fraction values are obtained for high size ratios α . There, one expects indeed that the voids left by large particles are filled with small particles.

It has been shown¹³ that the slow compaction dynamics of granular materials can be described by

$$\eta(t) = \eta_\infty - \frac{\eta_\infty - \eta_0}{1 + \ln(1 + t/\tau)} \tag{3}$$

being a typical logarithmic signature of glassy dynamics with τ characterizing the compaction rate. As shown in Fig. 2, the data are well fitted by the logarithmic law. By fitting all compaction curves, it is possible to extract the initial packing fraction η_0 , the asymptotic packing fraction η_∞ , as well as the characteristic number of taps τ for the compaction process. It has been demonstrated²⁹ that τ is a relevant flowability indicator: high values of τ involves poor flowabilities. Moreover, a kinematic model³⁰ has been developed to describe slow compaction dynamics (such as Eq. (3)). The model considers that each grain is trapped in a cage made by its neighbors. The compaction dynamics is then captured by

$$\tau \propto \exp\left(\frac{B}{\Xi}\right) \tag{4}$$

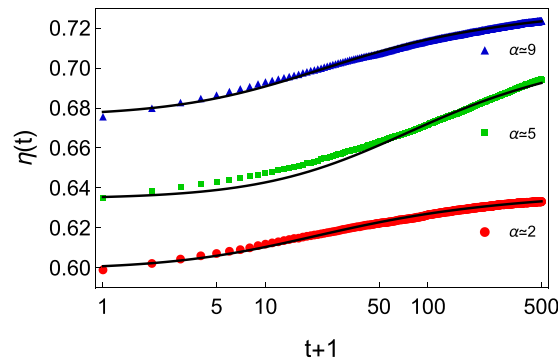


Figure 2. Three experimental compaction curves $\eta(t)$ in a semi-log scale. While the mixture composition is the same ($f=0.20$), three different size ratios α are shown. They correspond to the conditions of Fig. 1 (top row). The dark curves correspond to fits with the logarithmic law Eq. (3).

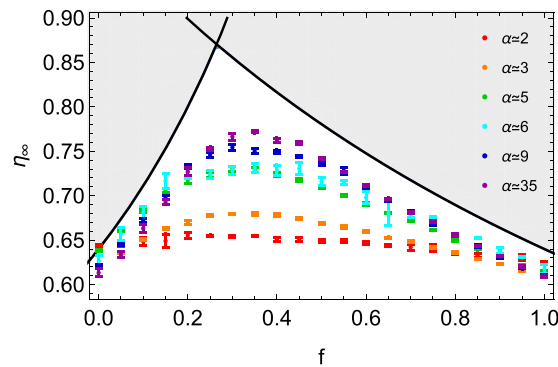


Figure 3. Asymptotic packing fraction η_∞ as a function of the fraction f . Different size ratios α are shown, and colored according to previous figures. Error bars are indicated. Theoretical curves, i.e. Eqs (5) and (6), found for idealized mixtures, are also shown. Since those curves are the upper limit for the packing fraction, the unreachable values are colored in grey.

where B is some energy barrier that each grain should overcome to escape the cage, i.e. to increase the local density, while Ξ is the energy injected per grain during one tap. When $B \ll \Xi$, particles possess a high mobility such that compaction dynamics is fast. On the contrary, $B \gg \Xi$ represents the jamming of the pile. This model has been used to describe the compaction of wet sand³⁰, or to explain the extreme sensitivity of glass sphere packing with RH variations³¹. This last result motivated us to keep RH fixed herein.

Figure 3 presents the asymptotic packing fraction η_∞ as fitted from the logarithmic law (3). One observes that both size ratio α and mixture composition f have a significant effect on the packing fraction. For each α value, the packing fraction increases with f , reaches a maximum around $f \simeq 0.30$, and then decreases towards the classical value found for identical spheres, just below η_{RCP} . There is a clear optimal value of the composition for obtaining dense assemblies. It should be remarked that this effect is more and more pronounced when increasing the size ratio α . High packing fractions up to 0.77 have been obtained. Figure 4 presents packing fractions obtained with two α values ($\alpha \simeq 3$ and $\alpha \simeq 5$). Different grain diameters were selected to obtain similar α values. The plot shows that the obtained results are quite robust over various grain diameters.

In order to better illustrate the size ratio effect, Fig. 5 shows the asymptotic packing fraction η_∞ as a function of α for a fixed composition $f=0.20$. A purely empirical exponential saturation is fitted on the data, which shows that the packing fraction jumps around α_c and saturates for high α values. Similar behavior for other f values are expected and the amplitude of the size ratio effect is the largest around $f \simeq 0.30$.

Binary dense systems with high α values, as represented in the right pictures of Fig. 1, should describe asymptotic packing fraction η_∞ . Two extreme compositions are distinguished, as proposed in^{24,26}. When the large particles dominate the packing, for small f values and high α values, one has

$$\eta_\infty = \frac{\eta_{RCP}}{1 - f} \tag{5}$$

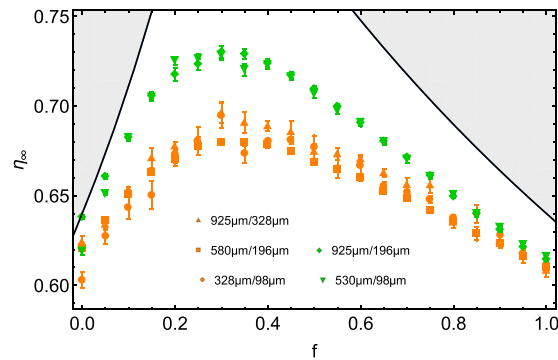


Figure 4. Asymptotic packing fraction η_∞ as function of the fraction f . Error bars are indicated. Two size ratios ($\alpha \simeq 3$ and $\alpha \simeq 5$) with different bead sizes are compared. Data with similar size ratios collapse on the same behavior. Theoretical curves, i.e. Equations (5) and (6), found for idealized mixtures, are also shown. Since those curves are the upper limit for the packing fraction, the unreachable values are colored in grey.

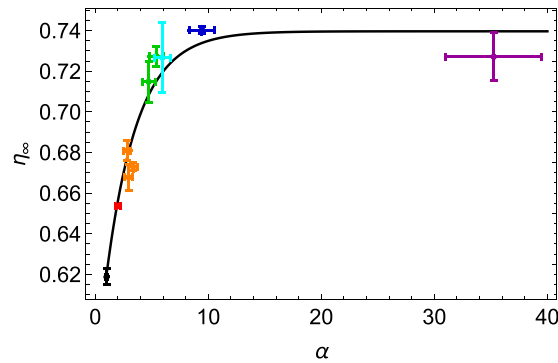


Figure 5. Asymptotic packing fraction η_∞ as a function of the size ratio α for a fixed $f=0.20$. One can observe that the asymptotic packing fraction increases with α and saturates for high values. Error bars are indicated. The color code is the same as the ones of the previous figures. The monodisperse case $\alpha=1$ has been added for completion in black. The plain curve is a fit of an exponential saturation, emphasizing that, for $\alpha > \alpha_c$, η_∞ becomes independent of α .

while the case of high fraction of small particles is more described by

$$\eta_\infty = \frac{\eta_{RCP}}{f + \eta_{RCP}(1 - f)} \tag{6}$$

Both cases are represented by dark plain curves in Fig. 3, delimiting unreachable values colored in grey. At the intersection of that curves, the model predicts an optimum around $f \simeq 0.25$, a little bit lower than our experimental result. One should remark that the idealized model overestimates the values obtained in our experimental study. The small polydispersity of our granular samples may explain partially the deviations from the idealized model. Moreover, one can observe differences between our experimental results and simulations²⁴. In the particular case of $f=0.20$, for $\alpha=5$, Prasad *et al.* obtained $\eta \simeq 0.78$ when the model predicts $\eta=0.80$. That represents an underestimation around 2.5%. We found for the same parameters $\eta_\infty \simeq 0.72$, that gives an underestimation of 10%. The main reason of this larger difference with the model may come from the gravity. Indeed, in the simulations of Prasad, the beads are randomly placed and the packing relaxes without the gravity force, which leads to a homogeneous compact mixture, as supposed in the model. In our case, there is a size separation of the beads due to the percolation. It remains empty voids which could have been filled by small beads, such as the compacity is lower in a heterogeneous mixture. Furthermore, while the model considers the maximum compacity of a monodisperse medium with $\eta_{RCP}=0.64$, we experimentally have $\eta_\infty < \eta_{RCP}$ for $f=0$ and $f=1$. A reduced value $\eta_* < \eta_{RCP}$ may be used instead of η_{RCP} in Eq. (5) and Eq. (6) in order to decrease the predicted values. Another consequence is that the critical value f_c , where the compacity is maximum, would be enhanced. Indeed, one has

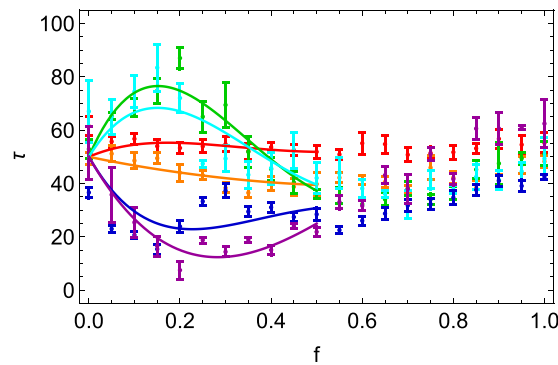


Figure 6. Plot of τ as function of the volume fraction f of small beads in granular mixtures with different size ratios α . The color code is the same as the ones of the previous figures. Error bars are indicated. Plain curves are guides for the eye, being polynoms fitted on the data $0 \leq f \leq 0.50$.

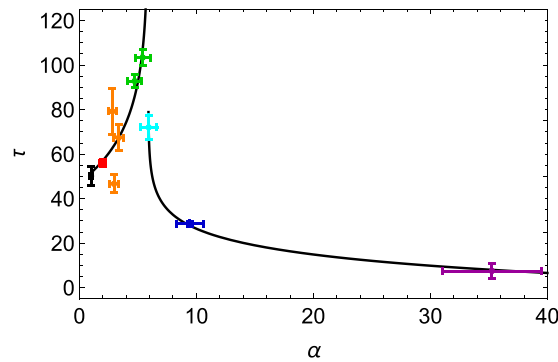


Figure 7. The characteristic tap number τ as a function of the size ratio α for a specific volume fraction of small beads $f=0.20$. Plain curves are guides for the eye only, emphasizing a divergent behavior close to α_* . The color code is the same as the ones of the previous figures. The monodisperse case $\alpha = 1$ has been added in black. Error bars are indicated.

$$f_c = \frac{1 - \eta_{RCP}}{2 - \eta_{RCP}} \tag{7}$$

For $\eta_{RCP}=0.62$, one has $f \simeq 0.28$, closer to the observed value $f \simeq 0.30$.

Let us now consider the compaction dynamics of our binary mixtures. Compaction dynamics, as described by Eq. (3), is strongly governed by τ , which is linked to the mobility of the particles. Figure 6 shows this characteristic tap number τ as a function of f for various α values. Huge variations of τ are observed as a function of f and α . Data show different behaviors for low and high f values respectively. We will distinguish both cases here below.

For high f values, i.e. when large particles are well separated by small particles, the characteristic number of taps seems indeed to be weakly dependent of f and α . Averaged values give $\tau \simeq 50$, which is the value obtained for pure systems. The compaction dynamics of the situations illustrated in the bottom pictures of Fig. 1, i.e. large particles dispersed in a medium made of small particles, is therefore driven by the prevalent small particles. The system behaves like a monodisperse granular medium.

However, when the small particles are filling the voids created by large bodies, as illustrated in the first row of Fig. 1, compaction τ shows quite different behaviors for small and large α values. Small diameter ratios ($\alpha < \alpha_*$) lead to higher τ values, while much lower τ values are observed for $\alpha > \alpha_*$. This effect, emphasized by the plain curves in Fig. 6, is maximum when $f \simeq 0.20$. The behavior is better seen on Fig. 7 where only $f=0.20$ values are indicated as a function of α . One observes a clear divergence of τ when approaching the values α_c from below. A diverging behavior, as expected near a critical point α_* ³², such as

$$\tau(\alpha) - \tau(1) \propto (\alpha_* - \alpha)^{-\gamma}, \text{ for } \alpha < \alpha_* \tag{8}$$

$$\tau(\alpha) - \tau(\infty) \propto (\alpha - \alpha_*)^{-\gamma'}, \text{ for } \alpha > \alpha_* \quad (9)$$

is shown on Fig. 7 as a guide for the eye. A kind of λ -transition can be observed. More extensive measurements are needed in order to fit such a divergent behavior. Nevertheless, from our data, we identify $\alpha_* \simeq 5.5$ where the system is the most jammed, i.e. slightly below the Descartes critical point α_c . This difference between α_c and α_* should be attributed to the disorder which creates substantial voids between large grains. Our value of α_c is consistent with previous studies²⁴ where the vanishing fraction of freely moving particles in the system takes also place just before α_c . We prove therefore that compaction measurements allow us to detect such a jamming point.

Before α_* , the small grains can hardly fill the voids between large ones close to $\alpha = 1$. The jamming of the mixture is close to the monodisperse case. The ability to fill voids increases with the size ratio and the grains have less space to eventually move at each tap. Each bead species acts as a barrier for the motion of the other one. As a result, the mobility decreases, so that the compaction time increases. Moreover, around α_* , the small grains have the suitable size to fill the voids the most effectively. The mobility of the grains is minimum there. Numerical simulations like ones of²⁴ may provide a way to model compaction.

Moreover, by increasing the size ratio α to higher values, τ values far below the monodisperse case are found, i.e. $\tau(\alpha \gg \alpha_*) < \tau(1)$. Despite the segregation, the compaction dynamics of the entire mixture is significantly enhanced for high α values in that regime ($f \ll 1$). The reason why tiny particles, percolating through the voids left by large ones, are able to speed up compaction is still unclear. The small particles may act, in those conditions, as a lubricant in the system. This effect is well known in applied science where mixtures are used to control the flowability of powders³³. The latter effect should be more deeply analyzed in future works and may serve as a basis for determining the composition of powders and granulates in high tech applications, such as additive manufacturing or pharmaceutical drugs, being highly sensitive to flow effects.

Conclusion

We presented in this article our results on binary mixtures. We varied the mass fraction f for different size ratios α . We observed, as previous studies^{16–21,24}, the increasing behaviour of the asymptotic compacity η_∞ with α . Moreover, we investigated the dynamics of the compaction by measuring the typical time of compaction τ by adjusting the decreasing logarithmic law Eq. (3). We observed large variations of τ with the size ratio close to $f = 0.20$. At this fixed mass fraction, the typical compaction time seems to diverge before the percolation threshold, close to $\alpha_* \simeq 5.5$. This may be explained by the disorder in the packing which create larger voids than in the perfect crystal lattice, allowing small beads to percolate before the theoretical value.

When $f = 0.20$ we distinguish three cases. When $\alpha \ll \alpha_*$, the small beads fill the voids between large ones as easily as the size ratio allows. They reduce the available space which reduces the mobility of grains and intensify the jamming. When $\alpha \simeq \alpha_*$, the size of the small beads is little enough to fill the voids between the large ones without percolation. As the mobility is minimum, the jamming is maximum at this point, leading to the observed diverging behaviour of τ . When $\alpha \gg \alpha_*$, the packing is mainly structured by large beads. However, the small beads can percolate through the voids and can sneak between large ones. This may reduce the contacts between large beads and can frustrate the jamming network.

At our knowledge, our work is the first experimental evidence of a jamming transition in binary granular mixtures by measuring a diverging quantity. Moreover, we also discovered that compaction can be significantly enhanced when tiny particles able to percolate in the system are mixed with the large particles. This superfast compaction dynamics is only observed for compositions for which high packing fractions are obtained. This effect may help scientists to optimize the density and the rheology of materials made of solid particles.

Methods

Because of the popularity of the density measurement for powder characterization^{29,34}, the procedure to perform this measurement is normalized³⁴. Although it is usually realized with naked eyes, some automated tools have been developed to improve the precision of this characterization method and to extract additional physical parameters. In our case, we use the automated device GranuPack from GranuTools^{29,35}. The measurement is done in a metallic tube to avoid the accumulation of electric charges during the measurement. The diameter and the length of the tube used to perform the studies presented in this paper are $D = 26$ mm and $L = 100$ mm. In order to obtain a reproducible and spatially homogeneous initial packing, the following initialization protocol is used. A narrower and bottomless tube is inserted into the measurement tube. Afterward, the initialization tube is filled with the granular material and is removed upward at a low and constant velocity $v = 1$ mm/s leaving the grains to rearrange themselves in the measurement tube. Then a light hollow cylinder is gently placed on the top of the pile to keep it flat during the compaction process. To apply a tap on the packing, the tube goes up to a height of $\Delta z = 1$ mm and experiences a free fall over the same height. After each tap, a distance sensor measures the position of the hollow cylinder. From this distance, the height h and the volume V of the pile are computed. As the introduced mass of powder is known, the bulk density ρ_{bulk} evolution as a function of the tap number t is calculated. The bulk density is the ratio between the mass m and the volume V of the powder. The packing fraction η is calculated by dividing the bulk density ρ_{bulk} by the true density $\rho_{\text{true}} = 2490$ kg/m³ of the material.

References

1. Jaeger, H. M. & Nagel, S. R. Physics of the granular state. *Science* **225**, 1523–1531 (1992).
2. Aste, T. & Weaire, D. *The Pursuit of Perfect Packing* (IOP, London, 1992).
3. Weitz, D. A. Packing in the spheres. *Science* **303**, 968–969 (2004).
4. Torquato, S. Perspective: Basic understanding of condensed phases of matter via packing models. *The Journal of chemical physics* **149**, 020901 (2018).

5. Torquato, S. & Stillinger, F. H. Jammed hard-particle packings: From kepler to bernal and beyond. *Reviews of modern physics* **82**, 2633 (2010).
6. Berryman, J. G. Random close packing of hard spheres and disks. *Phys. Rev. A* **27**, 1053–1061 (1983).
7. Onoda, G. Y. & Liniger, E. G. Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2727–2730 (1990).
8. Song, C., Wang, P. & Makse, H. A. A phase diagram for jammed matter. *Nature* **453**, 629–632 (2008).
9. Noirhomme, M., Ludewig, F., Vandewalle, N. & Opsomer, E. Cluster growth in driven granular gases. *Phys. Rev. E* **95**, 022905 (2017).
10. Lumay, G. & Vandewalle, N. Experimental study of granular compaction dynamics at different scales: grain mobility, hexagonal domains, and packing fraction. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 028002 (2005).
11. Carvente, O. & Ruiz-Suarez, J. Crystallization of confined non-brownian spheres by vibrational annealing. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 018001 (2005).
12. Panaitescu, A., Reddy, K. A. & Kudrolli, A. Nucleation and crystal growth in sheared granular sphere packings. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 108001 (2012).
13. Knight, J. B., Fandrich, C. G., Lau, C. N., Jaeger, H. M. & Nagel, S. R. Density relaxation in a vibrated granular material. *Phys. Rev. E* **51**, 3957–3963 (1995).
14. de Richter, S. K. *et al.* Vibration-induced compaction of granular suspensions. *Eur. Phys. J. E* **38**, 74 (2015).
15. Nicolas, M., Duru, P. & Pouliquen, O. Compaction of a granular material under cyclic shear. *Eur. Phys. J. E* **3**, 309–314 (2000).
16. Kwan, A. K. H., Chan, K. W. & Wong, V. A 3-parameter particle packing model incorporating the wedging effect. *Powder Technology* **237**, 172–179 (2013).
17. Wong, V. & Kwan, A. A 3-parameter model for packing density prediction of ternary mixes of spherical particles. *Powder Technology* **268**, 357–367 (2014).
18. Roquier, G. The 4-parameter compressible packing model (cpm) including a new theory about wall effect and loosening effect for spheres. *Powder Technology* **302**, 247–253 (2016).
19. Farr, R. S. & Groot, R. D. Close packing density of polydisperse hard spheres. *J. Chem. Phys.* **131**, 244104 (2009).
20. Danisch, M., Jin, Y. & Makse, H. A. Model of random packings of different size balls. *Phys. Rev. E* **81**, 051303 (2010).
21. Meng, L., Peng, L. & Shuixiang, L. Packing properties of binary mixtures in disordered sphere systems. *Particology* **16**, 155–166 (2014).
22. Duyu, C. & Torquato, S. Confined disordered strictly jammed binary sphere packings. *Physical Review E* **92**, 062207 (2015).
23. Hopkins, A. B., Jiao, Y., Stillinger, F. H. & Torquato, S. Phase diagram and structural diversity of the densest binary sphere packings. *Physical review letters* **107**, 125501 (2011).
24. Prasad, I., Santangelo, C. & Grason, G. Subjamming transition in binary sphere mixtures. *Phys. Rev. E* **96**, 052905 (2017).
25. Behringer, R. P. & Chakraborty, B. The physics of jamming for granular materials: a review. *Rep. Prog. Phys.* **82**, 012601 (2018).
26. Furnas, C. Grading aggregates-i.-mathematical relations for beds of broken solids of maximum density. *Ind. Eng. Chem.* **23**, 1052–1058 (1931).
27. Soddy, F. The kiss precise. *Nature* **137**, 1021 (1936).
28. Donev, A. *et al.* Improving the density of jammed disordered packings using ellipsoids. *Science* **303**, 990–993 (2004).
29. Lumay, G. *et al.* Measuring the flowing properties of powders and grains. *Powder Technology* **224**, 19–27 (2012).
30. Fiscina, J., Lumay, G., Ludewig, F. & Vandewalle, N. Compaction dynamics of wet granular assemblies. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 048001 (2010).
31. Vandewalle, N., Lumay, G., Ludewig, F. & Fiscina, J. E. How relative humidity affects random packing experiments. *Phys. Rev. E* **85**, 031309 (2012).
32. Stanley, H. E. *Phase transitions and critical phenomena* (Clarendon Press, Oxford, 1971).
33. Vandewalle, N., Lumay, G., Gerasimov, O. & Ludewig, F. The influence of grain shape, friction and cohesion on granular compaction dynamics. *Eur. Phys. J. E* **22**, 241–248 (2007).
34. *European pharmacopoeia 7.0*, chap.2.9.36, 308.
35. Traina, K. *et al.* Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement. *Powder Technology* **235**, 842–852 (2013).

Acknowledgements

This study is conducted in the framework of the “PowderReg” project, funded by the European programme Interreg VA GR within the priority axis 4 “Strengthen the competitiveness and the attractiveness of the Grande Région/Groß region”. We thank M. Marck for helping us to realize the measurements.

Author Contributions

S.P. collected and analyzed experimental data. Physical interpretations were provided by all authors. This manuscript was written by S.P. and N.V. All authors reviewed the manuscript.

Additional Information

Competing Interests: The authors declare no competing interests.

Publisher’s note: Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



Open Access This article is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License, which permits use, sharing, adaptation, distribution and reproduction in any medium or format, as long as you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons license, and indicate if changes were made. The images or other third party material in this article are included in the article’s Creative Commons license, unless indicated otherwise in a credit line to the material. If material is not included in the article’s Creative Commons license and your intended use is not permitted by statutory regulation or exceeds the permitted use, you will need to obtain permission directly from the copyright holder. To view a copy of this license, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>.

© The Author(s) 2019



Cite this: DOI: 10.1039/d0sm00939c

 Received 20th May 2020,
 Accepted 19th August 2020

DOI: 10.1039/d0sm00939c

rsc.li/soft-matter-journal

How size ratio and segregation affect the packing of binary granular mixtures†

 Salvatore Pillitteri,^{id}* Eric Opsomer, Geoffroy Lumay and Nicolas Vandewalle^{id}

For reaching high packing fractions, grains of various sizes are often mixed together allowing the small grains to fill the voids created by the large ones. However, in most cases, granular segregation occurs leading to lower packing fractions. We performed a wide set of experiments with different binary granular systems, proving that two main parameters are respectively the volume fraction f of small beads and the grain size ratio α . In addition, we show how granular segregation affects the global packing fraction. We propose a model with a strong dependency on α that takes into account possible granular segregation. Our model is in good agreement with both earlier experimental and simulation data.

1 Introduction

Granular and powdered systems are ubiquitous in nature. Their peculiar behaviours are strongly linked to the packing fraction η , being the ratio between the true volume V and the apparent volume V_a of a granular assembly. Indeed, voids left by the grains allow rearrangements in the structure such that η triggers both flowing and jamming behaviours.^{1–3} Therefore, increasing the packing fraction of a granular medium is of great interest in several sectors of applications such as construction, pharmaceutical industry and many other fields where powders are manipulated.^{4–9}

Granular materials are out of equilibrium systems.¹⁰ Consequently, if one pours granular material into a recipient, the measured packing fraction corresponds to a metastable state.¹¹ Indeed, the initial configuration is often a Random Loose Packing (RLP) which corresponds to a mechanical stable assembly, far from minimizing the gravity potential. For monodisperse spherical particles under normal gravity conditions, the RLP is found around $\eta_{\text{RLP}} \approx 0.60$.^{2,12,13} If one gently vibrates the granular medium, the packing fraction will increase because of the grain reorganizations. When η increases, the mobility of grains rapidly decreases and the system becomes jammed.¹⁴ A monodisperse sphere packing can reach at most $\eta_{\text{RCP}} \approx 0.64$, being the Random Close Packing (RCP).¹⁵ One should note that this value is far below the packing fraction of an ordered monodisperse sphere packing $\eta_{\text{fcc}} = \frac{\pi}{3\sqrt{2}} \approx 0.74$, corresponding to a face centered cubic (fcc) lattice.¹⁵

In granular materials, binary mixtures are systems made of particles with two different sizes. For the case of spherical particles, one can define the size ratio $\alpha = \frac{R_l}{R_s}$ as control parameter,¹⁶ R_l and R_s being respectively the radii of large and small particles. Binary mixtures of spheres with low size ratio $1 < \alpha < 1.4$ are commonly used by experimental and numerical scientists to avoid crystallization phenomena.^{17–19} However, for larger size ratios, these mixtures are known to reach higher packing fraction values than monodisperse systems. Both experimental and numerical studies have been performed on these systems^{16,20–25} and methods to predict the density of a bidisperse granular medium have been proposed.^{26–30} These approaches are based on a model proposed by Furnas *et al.*²⁶ It considers two extreme mixing scenarios: the first (I) being dominated by large particles and the second (II) being dominated by small ones, as sketched in Fig. 1 for three different grain size ratios.

The latter model is only valid for mixtures with large difference in size between both granular species. For this reason, analytical models^{27–30} have been proposed to take into account the size ratio in binary mixtures. Stovall *et al.*²⁷ introduced the concepts of the loosening and the wall effects as an explanation for the dependency of the packing fraction with the size ratio. Both effects are modeled by interaction functions which are added as correction terms to Furnas model. Yu *et al.*²⁸ and de Larrard *et al.*³¹ proposed different interaction functions. Despite data agreement, these functions are experimentally adjusted and their physical meaning is not easily seen.³² Moreover, these models consider homogeneous mixtures while granular segregation often occurs in packing experiments.

Experimentally, granular mixtures are rarely homogeneous.³³ Indeed, when there is a difference in size between particles,

Quartier Agora, allée du six Août 19, Liège, Belgium. E-mail: s.pillitteri@uliege.be;
 Tel: +32 4 366 3633

† Electronic supplementary information (ESI) available: “AnimFig4bAnd5.mov”, “AnimFig3And5.mov”. See DOI: 10.1039/d0sm00939c



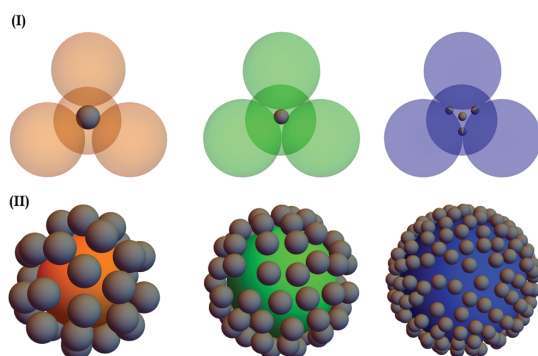


Fig. 1 Sketch of binary granular mixtures for three different grains size ratios: (orange) $\alpha = 3$, (green) $\alpha = 5$, (blue) $\alpha = 9$. (I) Large beads dominate the small ones. One can see that the small particles fill more easily the voids between large ones when the size ratio increases. (II) Small beads dominate large ones. The presence of the large bead locally affects the random packing of the small ones on its surface.

mechanical manipulations such as vibrations or flowing lead to segregation. Different effects such as the well known “Brazil Nuts effect”³⁴ or percolation^{35,36} may be the cause. When the size ratio is large enough, small particles naturally percolate due to gravity. We often observed this phenomenon during our experiments.

One can see in Fig. 2 examples of segregated small beads due to percolation. When the size ratio is higher than $\alpha_p = (3 + 2\sqrt{3}) \approx 6.46$,³⁷ gravity systematically leads to percolation of small particles through an ordered porous medium made by large ones. Indeed, three kissing large particles define the minimum pore size of $\frac{R_l}{\alpha_p}$. Any small bead with a radius

$R_s < \frac{R_l}{\alpha_p}$ can then percolate. The segregation for the size ratio $\alpha \approx 9$ is consequently obvious. Moreover, percolation can happen even for lower size ratios because the random structure leads to larger pores than expected for a fcc lattice. For this reason, one can observe percolation for $\alpha \approx 5$ and $\alpha \approx 3$. During experiments, mechanical agitation of the granular pile helps the percolation of small grains. Moreover, the pouring

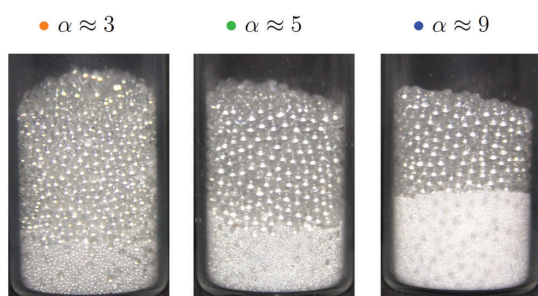


Fig. 2 Example of three mixtures, $\alpha \approx 3$, $\alpha \approx 5$ and $\alpha \approx 9$ with percolation after few taps. One observes the inhomogeneity of the mixtures. Glass containers are only used for this illustration.

procedure may lead to inhomogeneities in the horizontal direction since segregation also occurs during flow.³⁸

The objective of the present paper is to study binary mixtures and the impact of inhomogeneity on the packing fraction. We propose an original model which takes into account the size ratio and the inhomogeneity of the mixture. Our approach is based on physical arguments, corroborated by literature. We collected and analysed data from experimental and numerical works in order to test our model. Some experimental data come from our previous work S. Pillitteri *et al.*¹⁶ In this article, we will demonstrate that taking into account inhomogeneities allows to conciliate numerical and experimental results with a single model.

2 Experimental results

For collecting our data, we prepared several granular mixtures made of spherical glass beads with two different radii R_l and R_s , giving different size ratio α . For each mixture with a specific α , the relative composition of large and small beads can be tuned.

The volume fraction of small beads is defined as $f = \frac{V_s}{V_l + V_s}$, where V_l and V_s are respectively the true volumes of large and small beads. Please note that in our mixtures, a small polydispersity exists for each species. This means that α should be considered in a range giving a relative error of at most 12%.

We performed measurements for various size ratios α and volume fractions f of small beads. The relative humidity of the laboratory was kept constant at $RH = 35 \pm 5\%$. Indeed, previous studies have shown that humidity affects the packing of granular media.^{39,40} Initially, the system is expected to be in a loose configuration and is gently vibrated to increase the packing fraction.¹⁶ This process is called compaction and is performed with GranuPack instrument from GranuTools.³ The dynamic of this phenomenon is well described by the logarithmic law⁴¹

$$\eta(t) = \eta_\infty - \frac{\eta_\infty - \eta_i}{1 + \ln(1 + t/\tau)}, \quad (1)$$

where η_i and η_∞ are respectively the initial and asymptotic packing fractions, and τ the typical compaction time. By adjusting the compaction curve of the mixture with eqn (1), one obtains η_∞ . Examples of such curves adjustment can be seen in our previous work S. Pillitteri *et al.*¹⁶ One assumes that η_∞ corresponds to the Random Close Packing of the mixture. In this article, these values are compared to data from other works.

Typical experimental results for η_∞ are plotted in Fig. 3 as a function of f and for various size ratios α . A complete data set for α ranging from 3 to 35 has been collected. Each point of η_∞ , indexed by the pair of parameters f and α , is averaged over 10 experiments. The error bar of each point corresponds to the standard deviation around the mean. The color code is used to distinguish different α values throughout this paper. The plot shows that for each size ratio, one can define a fraction $f_{\max} \in [0.2, 0.4]$ for which the packing fraction is optimal. Increasing the size ratio enhances this optimal packing fraction $\eta_{\max} = \eta_\infty(f_{\max})$.



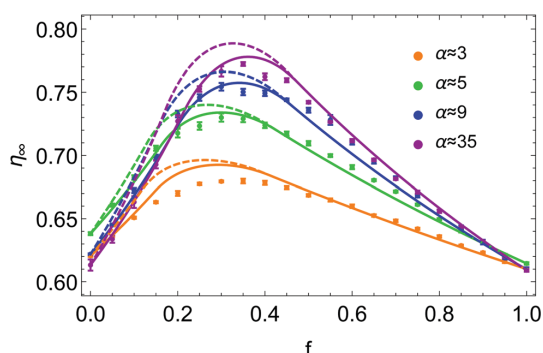


Fig. 3 Asymptotic packing fraction η_{∞} as a function of the volume fraction of small beads f in the mixture for different size ratios α . Experimental data are represented by points with specific colors related to their size ratio. Each set of data is fitted by eqn (6), with a step distribution $\Psi_l = D_1(z, p^*)$ and a gradient distribution $\Psi_s = D_2(z, f)$ respectively defined by eqn (7) and (8). The dashed curves are obtained with p^* forced to 0 (zero free fitting parameter) while the plain ones are obtained with $p^* = 0.12$ being a free fitting parameter.

3 Model

Our model stems from Furnas' approach which considers both extreme cases (I) and (II) cited before. Furnas model assumes that the mixture is homogeneous. Consequently, for each case, a global apparent volume, respectively V_l and V_{II} , can be computed. The global apparent volume of the mixture V_a is defined as the maximum between V_l and V_{II} and consequently depends on which phase is dominant. Then, the global packing fraction is obtained by the ratio between the total true volume $(V_l + V_s)$ and V_a .

In our case, the packing fraction is however computed differently. Since the inhomogeneity of the mixture can affect the packing fraction,^{42–44} and consequently the global apparent volume, one has to compute the local apparent volume V_a^{loc} instead of V_a for each case. Indeed, when the distributions of large and small particles are inhomogeneous, the dominant phase depends on the position in the granular pile. Under these conditions, $V_a = \max\{V_l, V_{II}\}$ is no longer valid. One has to take into account $\Psi_l(\mathbf{r})$ and $\Psi_s(\mathbf{r})$, respectively the distribution functions of the large and small beads in the normalized unit volume V^* of the granular pile. These functions follow the constraints

$$\int_{V^*} \Psi_l(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3 = \int_{V^*} \Psi_s(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3 = 1. \quad (2)$$

In the first case (I), when $f \rightarrow 0$, the system is mainly made of large beads. The apparent volume only depends on the structure of the large beads when $\alpha \rightarrow \infty$. Indeed, the small beads just fill the remaining voids, as illustrated on the top of Fig. 1 for $\alpha = 5$ and $\alpha = 9$. On the contrary, if $\alpha \rightarrow 1$, the remaining voids are broadened by small particles as illustrated for $\alpha = 3$. The local apparent volume V_l^{loc} is expected to be proportional to $\frac{1}{\alpha^3}$ for an ordered cubic binary system. Indeed, any variation of the radius of the small particle will lead to a displacement in

the three directions of space of the surrounding large beads, as illustrated in Fig. 1, in the case (I) with $\alpha = 3$. However, when the size ratio is large enough, a small bead cannot be in contact with more than two large beads. Indeed, it has been numerically observed that the average number of contacts of a small bead with large ones is below 3 for random packings of binary mixtures,^{20,45} even when the size ratio α is low. Consequently, the displacement of large particles takes place only in one direction. This results in a decrease of V_l^{loc} in $\frac{1}{\alpha}$. If one assumes that both species take a random packing arrangement, each weighted by its corresponding distribution function Ψ_l and Ψ_s , one can write the local apparent volume as

$$V_l^{\text{loc}} = \left(\Psi_l \frac{1-f}{\eta_l^0} + \Psi_s \frac{f}{\eta_s^0 \alpha} \right) (V_l + V_s), \quad (3)$$

where η_l^0 and η_s^0 are the packing fractions of the monodisperse cases for respectively the large and small beads. Generally, η_l^0 and η_s^0 are supposed to be equal to η_{RCP} . However, depending on experimental conditions such as the relative size of the particles compared to the size of the cell,^{46,47} their surface properties^{48,49} or the relative humidity^{39,40} in the laboratory, these values can be slightly different from an experiment to another. One therefore supposes that these experimental parameters are implicitly included in η_l^0 and η_s^0 . In our work, we used the measured values η_l^0 and η_s^0 in the model.

In the second case (II), when $f \rightarrow 1$, the mixture is in a random packing configuration dominated by small beads. However, one has to add an effective volume V_{eff} coming from the large ones. Indeed, if one places a large bead in this granular medium, the small spheres on its surface are locally at a lower packing fraction, as illustrated in Fig. 1. The effective volume V_{eff} takes into account the volume of the added particles and this disturbing effect. In Furnas model, this effective volume is strictly equal to the real volume of the large particles. In the extreme case, when $\alpha \rightarrow \infty$, one assumes that the effective volume tends indeed to V_l . We propose to develop the effective volume as the contribution of the volume V_l and a shell with the thickness of a small sphere radius. As the small particles in contact with the large one do not fill completely its surrounding space, one should multiply this shell volume by the local packing fraction ϕ at the surface. Using first order approximation, one can reduce the volume of the shell to the first term in $\frac{1}{\alpha}$. One has

$$V_{\text{eff}} \simeq V_l \left(1 + 3 \frac{\phi}{\alpha} \right). \quad (4)$$

If one assumes that the maximum number of small spheres that can be randomly placed at the surface of a large one is equivalent to a parking problem,⁵⁰ one can estimate ϕ . We simulated the random placement of small particles at the surface of a large sphere with various size ratios and systematically obtained $\phi \approx \frac{1}{3}$. We compared the number of small beads at the surface to the mean number of contacts between



large and small beads and found similar results in the literature.^{20,50–52} Accordingly, we propose to fix the local packing fraction with the value $\phi = \frac{1}{3}$. Finally, the local apparent volume for the case II can be written

$$V_{\text{II}}^{\text{loc}} = \left[\Psi_s \frac{f}{\eta_s^0} + \Psi_1 (1-f) \left(1 + \frac{1}{\alpha} \right) \right] (V_1 + V_s). \quad (5)$$

The local apparent volume V_a^{loc} is determined in the same way as for the Furnas model and is defined as the maximum between eqn (3) and (5). The global apparent volume is calculated by integration of V_a^{loc} over the unitary volume V^* . Dividing the total true volume ($V_1 + V_s$) by this global apparent volume, one has consequently for the global packing fraction

$$\eta_\psi(f, \alpha) = \frac{V_1 + V_s}{\int_{V^*} \max\{V_1^{\text{loc}}, V_{\text{II}}^{\text{loc}}\} d\mathbf{r}^3}. \quad (6)$$

One should note that both regimes of the Furnas model are recovered by taking the limit $\alpha \rightarrow \infty$ in eqn (3) and (5) for homogeneous mixtures. With this model, the packing fraction $\eta_\psi(f)$ increases with α , in agreement with experiment. This increase is however limited. Indeed for the special case $\Psi_1 = \Psi_s = 1$, one obtains the Furnas model when $\alpha \rightarrow \infty$. When the packing is not homogeneous with $\Psi_1 \neq \Psi_s \neq 1$, the packing fraction is lower, as we will show later in this article.

4 Discussion

Experimental and numerical data can be fitted by eqn (6), after fixing η_1^0 and η_s^0 by the values obtained for monodisperse cases, respectively at $f = 0$ and $f = 1$. The simplest case that can be considered is the homogeneous mixture. The distribution functions can be defined as uniform distributions $\Psi_1(\mathbf{r}) = \Psi_s(\mathbf{r}) = 1$. We report our fit of eqn (6) on numerical data obtained from various simulations in Fig. 4(a). Since simulations consider generally homogeneous packings, one can observe a good agreement between the model and the data from various numerical studies.^{20–23} The dependency with α is well reproduced. Furthermore, the higher the size ratio, the better the fit. When the size ratio is low, as for $\alpha = 3$, one notes smooth behaviour of the data close to the optimum at f_{max} , quite different from the pointed shape predicted by the model. Indeed, this sharp peak at f_{max} appears only when the size ratio is large enough, as pointed out by Prasad *et al.*²²

The numerical results differ from experiments. Indeed, one can compare the simulations data to our experimental results and some data taken from other experimental works,^{24,25} presented in Fig. 4(b). The smooth optimum is always observed even for large α . Moreover, the slope in the left part of the curve is lower than for the simulations. On the contrary, the right parts of the experimental curves seem to have behaviours similar to the simulations data. We report our fit of eqn (6) on experimental data in Fig. 4, represented by dashed curves. If one considers homogeneous mixtures, the model reproduces the dependency with α , in agreement with experimental data.

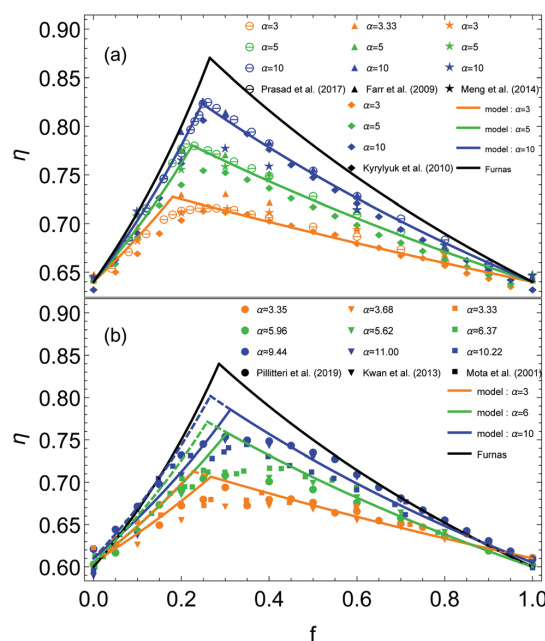


Fig. 4 (a) Packing fractions η obtained in earlier simulations as a function of the volume fraction of small beads f in the mixture. The data are taken from previous works.^{20–23} The distribution functions $\Psi_1 = \Psi_s = 1$ are uniform since the mixture is assumed to be homogeneous. (b) Packing fractions η experimentally obtained as a function of the volume fraction of small beads f in the mixture. The data are taken from previous works.^{16,24,25} The plain curves represent the model with $\Psi_1 = D_1(z, p)$ and $\Psi_s = 1$, and the dashed ones the predictions for homogeneous mixtures. (a and b) Three different size ratios α are considered. The color code remains the same as Fig. 3. Each set of data is fitted by eqn (6), represented by a curve of the same color. The black curve is obtained with the Furnas' model.

However, it seems unable to fit the left part of the experimental data. The slope is overestimated for the left part while the right part remains in agreement with the data. One has to take into account the inhomogeneity of the mixture to explain this difference.

Since percolation is observed experimentally, one assumes as a first approximation the existence of a monodisperse phase for the small beads in any mixture. The rest of small particles is supposed homogeneously mixed with the large ones. We propose to keep the uniform distribution $\Psi_s = 1$, and to define Ψ_1 as a step function along the vertical axis z , represented by the black plain curve in Fig. 5. We simplify the distribution to a one dimensional problem because the segregation occurs essentially in the direction of the height of the granular pile.

One has a step distribution $\Psi_1 = D_1(z, p)$ with

$$D_1(z, p) = \begin{cases} 0; & z < p \\ \frac{1}{1-p}; & z \geq p \end{cases}. \quad (7)$$

The parameter p is called the segregation parameter. When $\Psi_1 = D_1(z, p)$ and $\Psi_s = 1$, it directly corresponds to the relative



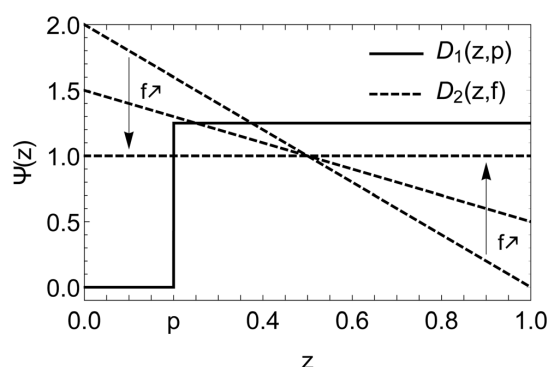


Fig. 5 Distributions $D_1(z,p)$ and $D_2(z,f)$ as a function of the normalised height z of the granular pile. The functions are respectively defined by eqn (7) and (8). The slope of $D_2(z,f)$ decreases with f in order to reach an uniform distribution in the limit $f \rightarrow 1$.

proportion of small particles in a monodisperse phase at the bottom of the packing ($z < p$), while large particles are still mixed with the rest of small particles for $z > p$. Indeed, integrating $\Psi_s = 1$ between 0 and p gives the portion of monodisperse small particles since the distribution of large ones is null in this range. On average, we obtained $p \approx 0.20 \pm 0.05$ as best adjustment parameter of experimental data of Fig. 4.

The results of such modelling are shown in Fig. 4(b). The plain curves represent the model with $\Psi_1 = D_1(z,p)$ defined by eqn (7) and $p = 0.20$ fixed. One can observe the difference compared to a homogeneous system, when $p = 0$, represented by the dashed curves. The existence of a monodisperse phase leads to a higher global apparent volume V_a . This results in a lower packing fraction η_ψ (ESI†). Consequently, the slope of the plain curves is lower than for the dashed ones, in the left part of the model. This effect can explain the difference between numerical and experimental data. Indeed, there is systematically inhomogeneities in mixtures for experiments while simulations are expected to generate homogeneous mixtures.

Unexpectedly, the monodisperse phase of small beads has no influence on the right part of the curves. Actually, the model predicts that the latter would be affected by the presence of a monodisperse phase of large particles. Indeed, with a small amount of unmixed large beads, one can define $\Psi_s = D_1(1 - z,p)$ and $\Psi_1 = 1$. With these distributions, p corresponds to the proportion of large particles segregated in a monodisperse phase. In this case, the slope of the right part will decrease while the left part will be unchanged. This can happen, for example, when the Brazil Nuts effect occurs. However, during our experiments, the compaction procedure was not able to create convection or sufficient shakes in the granular pile to generate this phenomenon.

Nevertheless, it remains possible to control the fraction of large particles in a monodisperse phase. Indeed, one can divide the large particles into two parts, the first mixed with small particles and the second kept unmixed. After pouring the mixture, one can place on top of the granular pile the rest of large particles.

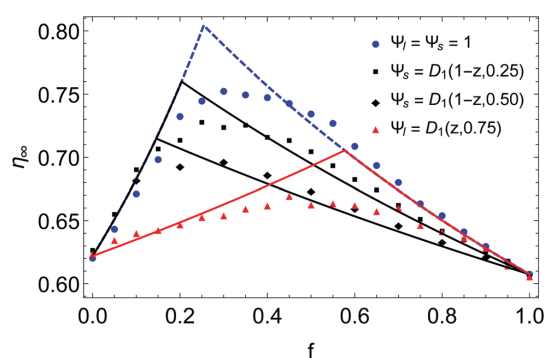


Fig. 6 Comparison between the model and experimental data for mixtures with different proportions of segregated large (in black) or small (in red) particles for $\alpha \approx 9$. In this particular case, p is known and corresponds to the proportion of segregated particles in the monodisperse phase. The blue data are the mixtures with no control on the segregation, as presented in Fig. 3 and 4.

In this way, one obtain a monodisperse phase of large beads. In addition, the proportion of segregated large particles is known. We did so for different controlled proportions of segregated large particles p . The experimental results are presented in Fig. 6, in black, for the size ratio $\alpha \approx 9$. They are compared to the model, using the corresponding parameter p with the distributions $\Psi_1 = 1$ and $\Psi_s = D_1(1 - z,p)$. One observes for experimental data the decrease of the right part of the curve when the proportion of segregated large particles increases while the left part remains unchanged as predicted by the model.

We performed the same kind of experiment for small particles by pouring an unmixed proportion p at the bottom of the cell before pouring the mixture with the rest of small beads. Since percolation can occur in the mixture itself, a large proportion of unmixed small particles $p = 0.75$ was chosen in order to control as much as possible the segregated part. Indeed, even if a small quantity of small beads percolates in the mixture, this supplement can be negligible compared to the part already unmixed. One can see the results in red in Fig. 6. The data are also compared to the model with $\Psi_1 = D_1(z,0.75)$ and $\Psi_s = 1$. One effectively observes in this case that the slope of the left part is greatly decreased while the right one remains unchanged.

The agreement between the model and experimental data seems good at first approximation. However, one should point out the large deviations close to f_{\max} . The experimental optimum value η_{\max} is lower than expected. Moreover the smooth shape at the optimum is still absent.

Let us investigate more deeply the model. We observed that small beads tend to percolate for low values of f and are preferentially distributed at the bottom of the granular pile. On the contrary, for large values of f , they represent the dominant phase and are homogeneously distributed. One assumes that under gravity the small beads are distributed according to a gradient along z when $f \rightarrow 0$. When $f \rightarrow 1$, Ψ_s must tend to a uniform distribution. We propose to define $\Psi_s = D_2(z,f)$ with



$$D_2(z, f) = f + 2(1 - z)(1 - f). \quad (8)$$

This empirical behavior is represented in Fig. 5 by dashed lines. The distribution $\Psi_1 = D_1(z, p^*)$, as defined by the eqn (7), is used. We obtained $p^* \approx 0.12 \pm 0.02$ as the best adjustment of data in Fig. 3. One notes that $p^* < p$. This can be understood as follows: if one integrates $\Psi_s = D_2(z, 0)$ between 0 and 0.12, one obtains a proportion of monodisperse small particles about 0.23, close to the previous value $p = 0.20$ obtained in Fig. 4(b). One can understand that for a same proportion of unmixed small particles, $p^* \leq p$ when Ψ_s is a decreasing law. Unfortunately, p^* does not correspond directly to the proportion of segregated small particles, even if it is strongly related. The results of such modelling are reported in Fig. 3 (ESI†). The plain curves are obtained with $p^* = 0.12$. One can see the good agreement with the experimental results. One notes that the smooth shape can be obtained close to the optimum at f_{\max} when the inhomogeneous distribution $\Psi_s = D_2(z, f)$ is used in eqn (6). Indeed, a step function just affects the slopes of the right and left parts, as it has been demonstrated in Fig. 4 and 6, since the distribution is null below p and uniform beyond. On the contrary, the presence of a non uniform distribution, such as a gradient, generates a smooth shape at the optimum.

One figures out that the smooth shape at the optimum of experimental data may be due to the non uniform distribution of small particles in the mixture. Indeed, because of the granular segregation coming from percolation of small particles, Brazil Nuts effect or other phenomena, mixtures made of different particles sizes are rarely homogeneous. Moreover, it is probable that segregation leads to complex distributions of particles, like gradients, rather than a simple separation into monodisperse phases. Therefore, one should take into account the distributions of small and large particles in the granular medium to obtain the smooth curve at the optimum. Moreover, one notes that for numerical data in Fig. 4(a), where the packing is generated homogeneously, the smooth peak is absent when the size ratio is large enough.

In Fig. 3, the dashed curves are obtained with the segregation parameter $p^* = 0$. In this case, no small beads is considered in a monodisperse phase. One notes that better fits are obtained considering a small amount of unmixed small particles, with $p^* = 0.12$.

5 Conclusion

In summary, we have experimentally and theoretically studied the packing fraction η in the case of binary mixtures. We proposed a model that takes into account the size ratio α between two kinds of particles and the distributions Ψ_1 and Ψ_s of both species in the granular pile. This model captures the behavior of experimental and numerical data, with the segregation parameter p as a single free adjustment parameter.

However, we used p as a free parameter because the distributions Ψ_1 and Ψ_s are unknown. If one imagines knowing these distributions, no adjustment parameter would be needed. Indeed, we intentionally segregated different proportions of

large or small particles in the granular pile in order to fix Ψ_1 and Ψ_s . We observed good agreement with experimental data using directly these distributions, without any adjustment parameter. It remains however difficult to control everything in the mixture since natural segregation often occurs in granular media during manipulation.

Future numerical study should investigate more deeply the dependence of the distributions Ψ_1 and Ψ_s on the packing fraction η . Indeed, in this case, more complex distributions could be fixed and no adjustment parameter will be needed. One could compare the numerical results with the model, knowing exactly the distributions.

Conflicts of interest

There are no conflicts to declare.

Acknowledgements

This study is conducted in the framework of the ‘‘PowderReg’’ project, funded by the European program Interreg VA GR within the priority axis 4 ‘‘Strengthen the competitiveness and the attractiveness of the Grande Région/Großregion’’. We thank M. Marck for helping us to realize all the measurements.

Notes and references

- 1 A. Ikeda, L. Berthier and P. Sollich, *Phys. Rev. Lett.*, 2012, **109**, 018301.
- 2 C. Song, P. Wang and H. A. Makse, *Nature*, 2008, **453**, 629–632.
- 3 T. K. Haxton, M. Schmiedeberg and A. J. Liu, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2011, **83**, 031503.
- 4 L. Li and A. Kwan, *Powder Technol.*, 2014, **253**, 514–521.
- 5 M. Jones, L. Zheng and M. Newlands, *Mater. Struct.*, 2002, **35**, 301–309.
- 6 P. Stroeven, H. He, Z. Guo and M. Stroeven, *Mater. Charact.*, 2009, **60**, 1088–1092.
- 7 G. Fu and W. Dekelbab, *Powder Technol.*, 2003, **133**, 147–155.
- 8 G. Lumay, F. Boschini, K. Traina, S. Bontempi, J.-C. Remy, R. Cloots and N. Vandewalle, *Powder Technol.*, 2012, **224**, 19–27.
- 9 F. Boschini, V. Delaval, K. Traina, N. Vandewalle and G. Lumay, *Int. J. Pharm.*, 2015, **494**, 312–320.
- 10 P. Richard, M. Nicodemi, R. Delannay, P. Ribiere and D. Bideau, *Nat. Mater.*, 2005, **4**, 121–128.
- 11 M. Nicolas, P. Duru and O. Pouliquen, *Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys.*, 2000, **3**, 309–314.
- 12 J. G. Berryman, *Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys.*, 1983, **27**, 1053.
- 13 G. Y. Onoda and E. G. Liniger, *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**, 2727.
- 14 G. Lumay and N. Vandewalle, *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **95**, 028002.



- 15 D. Weaire and T. Aste, *The pursuit of perfect packing*, CRC Press, 2008.
- 16 S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Sci. Rep.*, 2019, **9**, 1–7.
- 17 P. Pusey, E. Zaccarelli, C. Valeriani, E. Sanz, W. C. Poon and M. E. Cates, *Philos. Trans. R. Soc., A*, 2009, **367**, 4993–5011.
- 18 S. Williams, I. Snook and W. Van Meegen, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2001, **64**, 021506.
- 19 S. R. Williams, C. P. Royall and G. Bryant, *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **100**, 225502.
- 20 L. Meng, P. Lu and S. Li, *Particuology*, 2014, **16**, 155–166.
- 21 R. S. Farr and R. D. Groot, *J. Chem. Phys.*, 2009, **131**, 244104.
- 22 I. Prasad, C. Santangelo and G. Grason, *Phys. Rev. E*, 2017, **96**, 052905.
- 23 A. V. Kyrilyuk, A. Wouterse and A. P. Philipse, *Trends in Colloid and Interface Science XXIII*, Springer, 2010, pp. 29–33.
- 24 A. K. H. Kwan, K. W. Chan and V. Wong, *Powder Technol.*, 2013, **237**, 172–179.
- 25 M. Mota, J. A. Teixeira, W. R. Bowen and A. Yelshin, *Trans. Filtr. Soc.*, 2001, **1**, 101–106.
- 26 C. Furnas, *Ind. Eng. Chem.*, 1931, **23**, 1052–1058.
- 27 T. Stovall, F. De Larrard and M. Buil, *Powder Technol.*, 1986, **48**, 1–12.
- 28 A.-B. Yu, R. Zou and N. Standish, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 1996, **35**, 3730–3741.
- 29 G. Roquier, *Powder Technol.*, 2016, **302**, 247–253.
- 30 K. Chan and A. Kwan, *Particuology*, 2014, **16**, 108–115.
- 31 F. De Larrard, *Concrete mixture proportioning: a scientific approach*, CRC Press, 1999.
- 32 C. S. Chang, J.-Y. Wang and L. Ge, *Eng. Geol.*, 2015, **196**, 293–304.
- 33 B. Andreotti, Y. Forterre and O. Pouliquen, *Les milieux granulaires: Entre fluide et solide*, EDP sciences, 2012.
- 34 A. Rosato, K. J. Strandburg, F. Prinz and R. H. Swendsen, *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **58**, 1038.
- 35 A. K. Jha and V. M. Puri, *Powder Technol.*, 2009, **195**, 73–82.
- 36 S. Savage and C. Lun, *J. Fluid Mech.*, 1988, **189**, 311–335.
- 37 F. Soddy, *Nature*, 1936, **137**, 1021.
- 38 B. Marks, P. Rognon and I. Einav, *J. Fluid Mech.*, 2012, **690**, 499–511.
- 39 J. Fiscina, G. Lumay, F. Ludewig and N. Vandewalle, *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **105**, 048001.
- 40 N. Vandewalle, G. Lumay, F. Ludewig and J. E. Fiscina, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2012, **85**, 031309.
- 41 J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 1995, **51**, 3957–3963.
- 42 Z.-R. Liu, W.-M. Ye, Z. Zhang, Q. Wang, Y.-G. Chen and Y.-J. Cui, *Powder Technol.*, 2019, **351**, 92–101.
- 43 T. J. Fiske, S. B. Raikar and D. M. Kalyon, *Powder Technol.*, 1994, **81**, 57–64.
- 44 L. Woollacott, *Miner. Eng.*, 2019, **131**, 98–110.
- 45 N. B. Schade, M. C. Holmes-Cerfon, E. R. Chen, D. Aronzon, J. W. Collins, J. A. Fan, F. Capasso and V. N. Manoharan, *Phys. Rev. Lett.*, 2013, **110**, 148303.
- 46 A. Mughal, H. Chan, D. Weaire and S. Hutzler, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2012, **85**, 051305.
- 47 G. Scott and D. Kilgour, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1969, **2**, 863.
- 48 N. Vandewalle, G. Lumay, O. Gerasimov and F. Ludewig, *Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys.*, 2007, **22**, 241–248.
- 49 F. Ludewig, S. Dorbolo and N. Vandewalle, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2004, **70**, 051304.
- 50 M. L. Mansfield, L. Rakesh and D. A. Tomalia, *J. Chem. Phys.*, 1996, **105**, 3245–3249.
- 51 D. W. Cooper, *Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys.*, 1988, **38**, 522.
- 52 D. W. Cooper, *J. Colloid Interface Sci.*, 1987, **119**, 442–450.



Chapitre 5

Systemes tridispersees

5.1 Problematique

Dans le chapitre precedent, nous avons vu que les melanges bidisperses presentent des dynamiques tres differentes en fonction des rapports de tailles α et des fractions volumiques f de petites particules dans le systeme. Nous avons egalement montre que la segregation joue un role majeur dans la compacite du melange et que le modele que nous proposons est capable de tenir compte de tous ces elements pour predire η .

Après l'étude des melanges bidisperses, l'étape suivante consiste en l'étude des melanges tridispersees, ou ternaires, c'est-à-dire les melanges composés de trois tailles de billes. Ces melanges sont courants dans le monde industriel. Le beton haute performance, fait de gravier, de sable et de fumée de silice en est un exemple [111]. Ses propriétés d'écoulement comptent presque autant que sa compacite. En effet, le beton le plus dense possible est desire pour obtenir les meilleures performances en terme de resistance aux contraintes. Il faut neanmoins pouvoir le manipuler facilement lors du coffrage. De nombreux matériaux granulaires sont composés avec le même compromis. Il est donc utile de pouvoir predire la compacite et la coulabilité d'un melange granulaire complexe.

Dans l'article suivant, soumis pour publication dans "Physical Review E", nous montrons que le modele introduit dans le Chapitre 4 peut être étendu aux melanges tridispersees. De plus, sur base de ce modele et des observations des chapitres precedents, nous proposons une approche pour modeliser τ en fonction des proportions des différentes particules utilisées dans le melange ainsi que leur rapport de tailles. Le temps typique de compaction τ pouvant être lié aux propriétés d'écoulement, l'étude de la dynamique de compaction et sa modelisation representent une demarche porteuse pour predire la fluidité d'un melange granulaire.

5.2 Experience

Pour les melanges, nous avons selectionné trois tailles de billes de verre, de maniere à obtenir un rapport de tailles proche de 6 entre chaque espece consecutive. Nous avons utilisé comme diamètres $D_L = 3455 \mu\text{m}$, $D_M = 580 \mu\text{m}$, $D_S = 98 \mu\text{m}$. Nous avons donc des rapports de tailles $\alpha = D_M/D_S \approx 5.92$, $\beta = D_L/D_M \approx 5.96$ et $\gamma = D_L/D_S \approx 35.26$, avec une erreur relative d'environ 10 %.

Le protocole experimental est identique à celui appliqué dans le Chapitre 4 à la difference de l'utilisation d'un tube de 37 mm de diametre, cette fois. En effet, nous avons decide

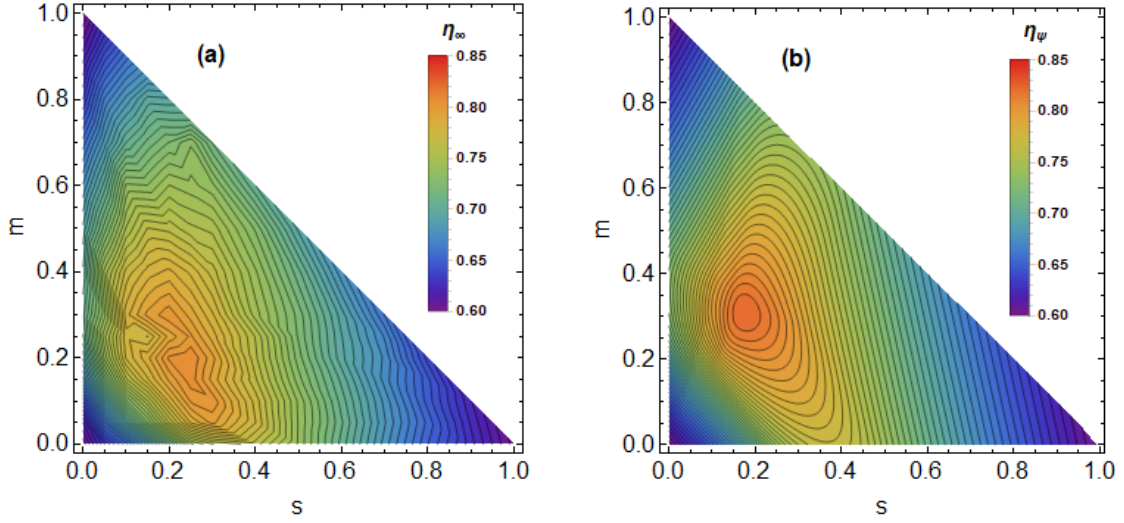


FIGURE 5.1 – (a) Compacité η_∞ obtenue expérimentalement en fonction des fractions volumiques s et m . (b) Compacité η_∞ obtenue avec le modèle en fonction des fractions volumiques s et m .

d'agrandir le tube afin de ne pas avoir un diamètre de tube trop proche de la taille de l'espèce la plus grande D_L .

5.3 Résultats principaux

Nous adaptons le modèle proposé dans le chapitre précédent aux mélanges ternaires. Nous définissons un ensemble de fractions volumiques $s = \frac{V_S}{V}$, $m = \frac{V_M}{V}$ et $l = 1 - s - m = \frac{V_L}{V}$, avec V_S , V_M et V_L les volumes totaux réels de petites, moyennes et grandes particules respectivement. On a $V = V_S + V_M + V_L$ le volume réel total de particules dans le mélange. Chaque espèce possède sa distribution telle que

$$\int_{V^*} \Psi_i(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3 = 1, \quad (5.1)$$

avec $i = \{L, M, S\}$ et V^* le volume normalisé. Avec les mêmes arguments et la même démarche que le modèle de Furnas, on dénombre trois cas extrêmes, chacun ayant une espèce dominante. Le détail du modèle est décrit dans l'article qui suit.

Nous avons mesuré la compacité η_∞ pour différents mélanges, en variant s , m et l . La Figure 5.1 (a) montre les résultats expérimentaux. Nous observons un optimum $\eta_{max} \approx 0.81$ pour un mélange tridisperse proche de $(s, m, l) = (0.25, 0.20, 0.55)$. En comparant notre modèle aux résultats avec les Figures 5.1 (a) et (b), nous constatons son adéquation face aux mélanges ternaires. Nous pouvons prédire la compacité du mélange pour n'importe quelle composition (s, m) juste en connaissant le rapport de tailles entre les particules. Les distributions des trois espèces peuvent être directement utilisées si elles sont connues. Dans la plupart des cas, elles sont malheureusement difficiles à connaître. Il est néanmoins possible d'exploiter des fonctions simples pour estimer ces distributions et obtenir de bons résultats.

L'optimum $\eta_{max} \approx 0.82$ est obtenu pour $(s, m) = (0.18, 0.31, 0.51)$. Même s'il est légèrement décalé par rapport à l'expérience, le résultat prédit par le modèle donne un bon aperçu de la région dans laquelle se situe le véritable optimum, tenant compte des approximations

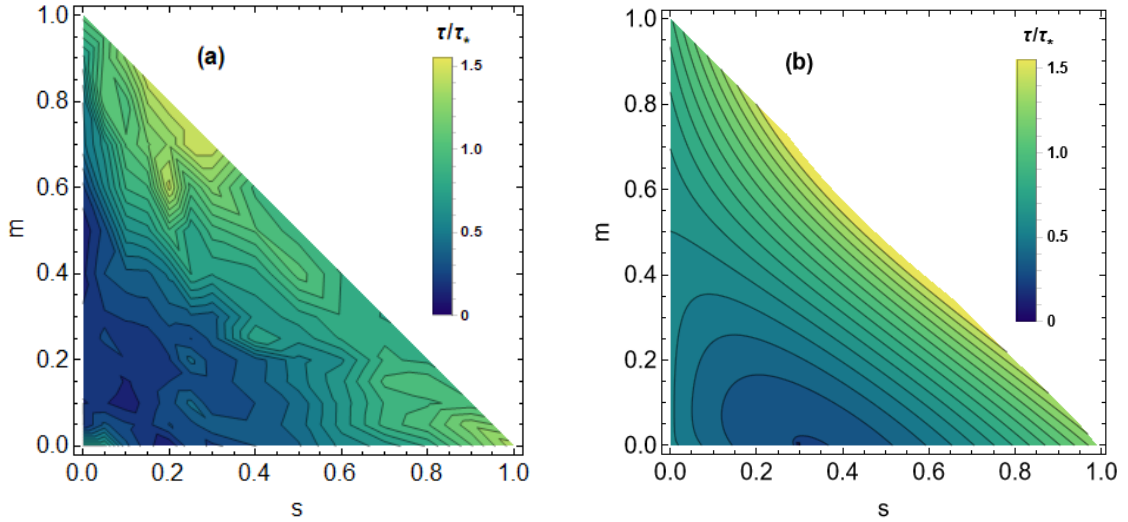


FIGURE 5.2 – (a) Temps typique de compaction τ obtenu expérimentalement en fonction des fractions volumiques s et m . (b) Temps typique de compaction τ obtenu avec notre modèle en fonction des fractions volumiques s et m .

appliquées aux distributions des trois espèces. Avec un tel modèle, il est envisageable de prédire avec une erreur restreinte l'optimum de compacité η_{max} et sa position (s, m, l) pour n'importe quel mélange ternaire.

La dynamique de compaction a également été analysée. La Figure 5.2 (a) présente τ en fonction de s et m . Sur base de la loi trouvée dans le Chapitre 3 et le modèle de compacité développé dans le Chapitre 4 et élargi au cas des mélanges tridisperse, une approche pour modéliser τ est proposée. Comme le montre la Figure 5.3, la loi $\tau \approx \Delta\eta/\mu_0$ semble vérifiée. Pour cette raison nous partons du postulat que $\tau \propto \frac{1}{\mu_0}$, avec $\frac{d\eta}{dt}|_0 = \mu_0$, que nous utilisons dans le modèle de compacité, détaillé dans l'article suivant.

Le résultat de notre modèle est présenté sur la Figure 5.2 (b). Certaines tendances globales peuvent être reproduites. Comme dans l'expérience, nous observons un minimum pour le mélange dominé par les grandes particules avec un ajout de petites particules. On remarque également que τ possède des valeurs élevées le long de la diagonale, lorsque le mélange est pauvre en grandes particules. Au contraire, τ reste à des valeurs plus faibles pour les mélanges dominés par les grandes particules.

La tendance générale obtenue avec les données expérimentales et le modèle rappelle les observations obtenues pour les bétons : un léger ajout de petites particules améliore souvent la fluidité du mélange [112, 113]. Cette similitude souligne l'intérêt de τ pour caractériser les propriétés d'écoulement des matériaux granulaires. D'autres travaux ont étudié les propriétés d'écoulement de mélanges ternaires et ont observé une augmentation de la coulabilité pour des mélanges dominés par les grandes particules [92, 93].

5.4 Résumé

Nous avons montré dans ce chapitre que le modèle de compacité introduit dans le Chapitre 4 peut être étendu à un mélange de trois tailles de particules différentes. Nous obtenons un bon accord entre le modèle et l'expérience, moyennant quelques suppositions sur la distri-

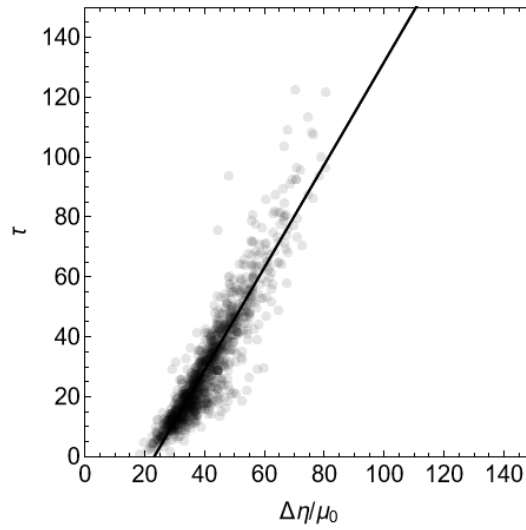


FIGURE 5.3 – Corrélation entre τ et $\frac{\Delta\eta}{\mu_0}$ obtenue pour les mélanges ternaires. La ligne noire est un guide pour l'oeil. Les points sont légèrement translucides. Les zones plus foncées correspondent donc à des résultats plus fréquents.

bution des trois espèces. De plus, nous avons proposé à partir de ce modèle de compacité une approche permettant de décrire la dynamique de compaction représentée par τ . Certaines tendances peuvent être prédites malgré les approximations. Bien que le modèle proposé ici pourrait être amélioré, nous pensons que cette approche pourrait ouvrir la voie à de futurs travaux pour la modélisation de la dynamique des mélanges granulaires.

Ternary granular mixtures : optimal compositions for packing and flow properties

S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer, and N. Vandewalle
GRASP, Institute of Physics B5a, University of Liège, B4000 Liège, Belgium.

Abstract - We investigate the case of ternary granular mixtures made of differently sized spherical beads. The size ratio between successive bead species is chosen around the percolation threshold above which the small particles freely move into the voids left by the larger ones. Experiments confirm the existence of an optimal composition for obtaining a dense packing. Moreover, we provide a model describing the ideal packing of ternary mixtures. In opposite to the common belief that dense granular packings are jammed, the flow properties of the mixture are found to be enhanced close to the densest system. A model is also proposed for describing the relaxation of dense granular mixtures.

I. INTRODUCTION

How spheres can fill a container in a dense arrangement is one of the oldest question in the physics of granular materials [1]. For identical spheres, the packing fraction η , defined as the ratio between the real and the apparent volume of a granular pile, has its maximum at $\eta_{fcc} = 0.74$, corresponding to the face-centred cubic lattice [2]. While this result is theoretically proven, it was never experimentally reached. The reason is that real sphere arrangements are disordered, and specific processes are needed to induce partial crystallization of the structure [3, 4]. For monodisperse spheres, the packing fraction varies between the Random Loose Packing $\eta_{RLP} \approx 0.55$, corresponding to the lowest value for a mechanically stable structure [5], and the Random Close Packing $\eta_{RCP} \approx 0.64$ [6], the latter being the maximal value that a monodisperse packing of spheres can experimentally reach without deformation of the particles.

By using spheres of different diameters in the same packing, the volume fraction η can be significantly increased [7–9]. Depending on the relative size of the grains, the voids left by large spheres can be filled by small ones. Moreover, studying the dynamics of packing arrangements of such polydisperse granular mixtures has a capital importance in fundamental and applied sciences. Indeed, a jamming transition can be evidenced around the percolation threshold [10–12], i.e. when small grains are able to freely move in the network of voids made by large particles, close to the optimum of η . This can influence the mobility of particles and then the flowing properties of the granular mixture.

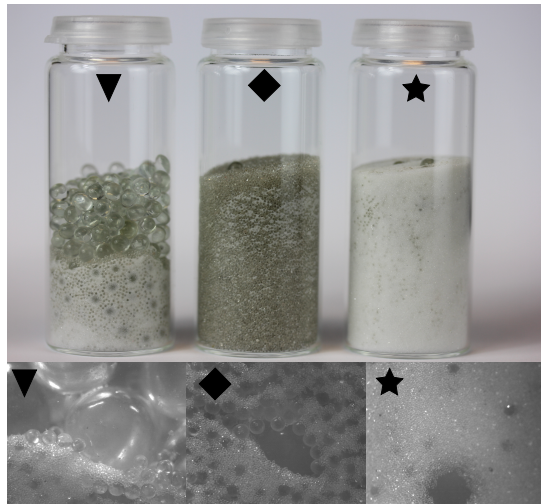


FIG. 1. Examples of three mixtures represented by dots. The triangle, the square and the star respectively correspond to $(s = 0.10, m = 0.10)$, $(s = 0.10, m = 0.80)$ and $(s = 0.80, m = 0.10)$. One notes the percolation of medium and small beads in the cell represented by the triangle and the filling of remaining space left by large beads.

From a more applied point of view, granular mixtures are manipulated in various industries for optimizing the solid fraction. As an example, the physical properties of concretes are controlled by the packing fraction of their mixture [13–16]. While the relative fractions of the components have been highly studied for optimizing the packing fraction, the flowability of polydisperse mixture remains poorly understood. Some studies investigated this aspect [17–23] and it is commonly admitted that adding small particles has the tendency to increase the flowability of concrete [24, 25].

In this article, we present our study on the packing arrangements of granular mixtures made of spherical glass beads with three different diameters. We show that our previously introduced packing model [26] can be adapted to ternary mixtures. Moreover, we address a question on the flow properties of such ternary mixtures by studying their compaction dynamics. Indeed, it has been observed that the dynamics of a compaction process of a granular media is related to its flow properties [27, 28].

II. MATERIAL AND METHODS

We performed compaction experiments with spherical glass beads with three different mean diameters : $D_L = 3455 \mu\text{m}$, $D_M = 580 \mu\text{m}$, $D_S = 98 \mu\text{m}$. Mixtures are shown in Figure 1. We choose these diameters in order to have size ratios for successive granular species close to 6. One has $\alpha = \frac{D_M}{D_S} \approx 5.92$, $\beta = \frac{D_L}{D_M} \approx 5.96$ and $\gamma = \frac{D_L}{D_S} \approx 35.26$, with a relative error of about 10%. One can point out that the ratios α and β are close to $3 + \sqrt{12} \approx 6.46$, corresponding to the theoretical limit when beads are able to percolate across the voids made by the large grains in an ordered structure [29]. In addition, $\gamma \approx 35 \gg 6.46$ such that small particles may move freely in the structure made of the largest ones.

We define s , m and l as the volume fractions of particles in the mixture for respectively small, medium and large beads. Only two independent volume fractions are necessary for describing the mixtures. We consider $s = \frac{V_S}{V}$ and $m = \frac{V_M}{V}$ as variables such that the last fraction is given by

$$l = \frac{V_L}{V} = 1 - s - m, \quad (1)$$

with $V = V_S + V_M + V_L$ the total real volume of particles. The ternary mixture can therefore be identified by the couple of fractions (s, m) . A picture of three typical mixtures is presented in Figure 1.

We performed compaction experiments with the GranuPack, from Granutools [30, 31]. The granular mixture is poured in a steel tube of 100 mm of height and 37 mm of diameter. This tube performs a set of free falls (or "taps") with a height of $\delta z = 1 \text{ mm}$ at the frequency $f = 1 \text{ Hz}$. An initialization protocol is used in order to guarantee the reproducibility of the measurements. A narrower and open tube is inserted into the measurement tube and removed upward at a low and constant velocity $v = 1 \text{ mm/s}$ after filling it with the granular material. This procedure is automated in order to avoid the human intervention.

After each tap, a distance sensor detects the surface of the granular column. From the measured position, the height h and the volume V of the granular pile are computed. As the introduced powder mass $M = 100 \text{ g}$ is known, the bulk density $\rho_{bulk} = \frac{M}{V}$ is obtained. The packing fraction η is calculated by dividing the bulk density ρ_{bulk} by the true density $\rho_{true} \approx 2500 \text{ kg/m}^3$ of the material. In this way, one obtains the compaction curve $\eta(t)$, t being the number of taps.

III. RESULTS

A. Compaction curves

Compaction curves have been recorded for 132 mixtures with different fractions s , m and l . For each mixture, data is averaged over 6 experiments. The curves

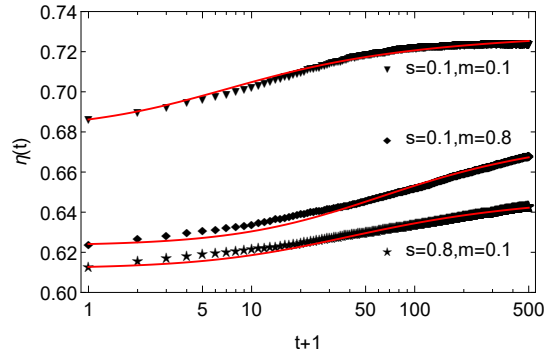


FIG. 2. Typical curves of compaction corresponding to three extreme positions (s, m) in the diagram of Figure 1. One can observe a fast compaction process in the case $(s = 0.10, m = 0.10)$. The red lines correspond to the logarithmic law (2) fitted over the data.

corresponding to the examples \blacktriangledown , \blacklozenge and \star in Figure 1 are presented in Figure 2 with the same symbols and are fitted by the classical logarithmic model [32]

$$\eta(t) = \eta_\infty - \frac{\eta_\infty - \eta_0}{1 + \ln(1 + t/\tau)}, \quad (2)$$

with η_0 being the packing fraction at the beginning of the experiment. Fitting parameters are the asymptotic packing fraction η_∞ and the typical compaction time τ . It has been shown that the later parameter is correlated to the flow properties of the granular material [27, 28]. A large τ generally corresponds to bad flow properties while low τ gives good flowability.

As seen in Figure 2, the packing fraction is dependent on the composition (s, m) . The mixture $(s = 0.10, m = 0.10)$ leads to the smallest τ since the compaction process reaches already the saturation before 500 taps. On the contrary, the two other curves exhibit a slower saturation with a larger τ . By systematically fitting the different curves with Eq. (2) for each couple (s, m) , one obtains the asymptotic packing fraction η_∞ and the typical time of compaction τ for each mixture.

B. Asymptotic packing fraction

From this set of experiments, one can provide a picture of the asymptotic packing η_∞ in a (s, m) diagram. This is shown in Figure 3 (a). The horizontal and vertical axis represent the volume fractions of small and medium beads respectively. The value of the packing fraction is represented by a color code. Lowest values tend towards the purple while highest ones tend towards the red. The pure species are the vertices of the triangular region. The three cases \blacktriangledown , \blacklozenge and \star introduced before are represented on the diagram by the same symbols.

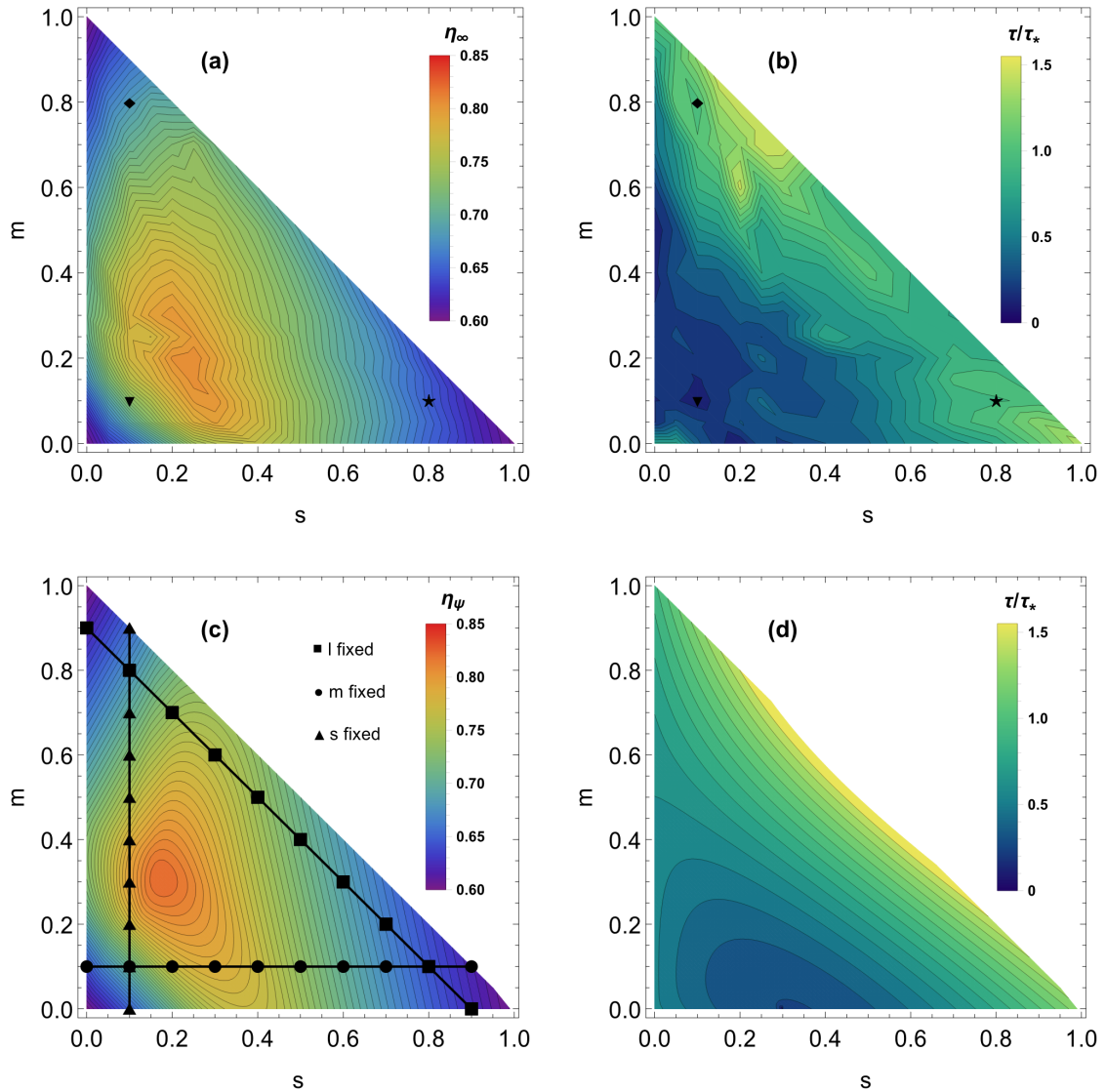


FIG. 3. (a) Experimental results of the packing fraction η_∞ as a function of the volume fractions s and m . (b) Experimental results of the typical time of compaction τ , rescaled by τ_* , as a function of the volume fractions s and m . Three cases are represented by symbols in parts (a) and (b), corresponding to the compaction curves presented in Figure 2. (c) Packing fraction obtained with (8) as a function of s and m . The black dotted curves represent slices of the ternary diagram at fixed value l , m or s , corresponding to the curves with the same symbols in Figure 5. (d) Typical time of compaction τ obtained with Eq. (19), rescaled by τ_* , as a function of s and m .

One can observe that η_∞ can be increased by adding particles of different sizes. The point $(0.00, 0.00)$ is a granular medium only made of large beads. The packing fraction is very low at this point and corresponds to the

the maximal value accessible for a monodisperse medium. This is the same for the two other extremities. If one keeps $m = 0.00$ and slowly increases s , one observes that η_∞ rapidly increases until a maximum close to $s = 0.30$

and decreases after. The same happens if one fixes $s = 0.00$ and varies m . However, higher values are reached when one adds both small and medium beads. Indeed the optimum $\eta_{max} \approx 0.81$. seems to be reached in the vicinity of $(0.25, 0.20)$.

Small and medium beads have the tendency to fill the remaining voids left by large ones. This mechanism is similar to the Apollonian sphere packing [33]. However, in nature, the organization of particles is random. The filling of the available space is thus less efficient than an Apollonian packing and gives a lower packing fraction.

If more small and/or medium beads are added beyond the vicinity of $(0.25, 0.20)$, the packing fraction decreases. The packing becomes less and less optimal because the small or medium beads become the dominant phase. As a result, large beads cannot generate a porous structure that can be filled by smaller beads.

C. Compaction dynamics

As it has been previously shown, the typical compaction time τ depends on the mixture composition [12]. We report in Figure 3 (b) the evolution of τ depending on (s, m) , rescaled by τ_* being the mean value of the compaction times at the vertices. A complex behaviour of τ can be seen. However, one can observe globally a net difference between the case when there are mostly large beads, close to $\blacktriangledown \rightarrow (0.10, 0.10)$, and the case when there are few large beads ($l \simeq 0$ along the diagonal). In the first case, τ is lower than at the vertices, meaning that mixtures dominated by large particles with small and medium beads added compact faster than pure species. In the opposite case, τ is higher than for pure species when the fraction of large beads is low.

This suggests that the mixture has globally a better flowability when large beads dominate. A similar tendency has been reported, measuring the flow function of granular mixtures [17, 18]. However, a small quantity of smaller particles leads to a better flowability as observed in high performance concrete [24, 25]. Small particles acting as ball bearings may be a possible explanation for this increased fluidity [20].

In order to understand the complex variation of τ landscape, we will take the three extreme cases when l , m or s equal zero. Indeed, in these situations, one has binary mixtures, which is easier for reasoning. One assumes that the complex behaviour of τ for ternary mixtures is a competition between these three cases. It should first be noted that the size ratio is different between these three binary mixtures.

As it has been reported in a previous work [12], the compaction time increases above $\alpha^* \approx 5.5$ and decreases beyond in a divergent way. This diverging behaviour happens when the mixture is dominated by large particles with a small quantity of small particles added. A similar jamming transition was observed in numerical simulations, measuring the fraction of rattled small particles in

binary mixtures [10, 11]. As a consequence, high τ can be obtained close to $\alpha^* \approx 5.5$ and low τ are obtained when the size ratio is large compared to this value.

For the mixture made of small and large beads, τ decreases along the s axis in the vicinity of $(0.20, 0.00)$ because $\gamma \approx 35 \gg \alpha^*$. For the mixture made of small and medium beads, the size ratio $\alpha \approx 6$ is close to the limit α^* . For this reason, one observes an increase of τ along the diagonal in the vicinity of $(0.20, 0.80)$. One can suppose that the system is jammed because small particles can almost perfectly fill the remaining voids. The decrease of τ along the m axis is similar to the behaviour along the s axis although $\beta \approx 6$ is also close to α^* . The relative error on the size ratio could lead to a higher value of β and explain this behaviour. It is also possible that the mixture of large and medium beads is more prone to wall effect. This may decrease α^* , which could explain the decrease of τ in the vicinity of $(0.00, 0.20)$.

The minimal compaction time occurs at $(0.20, 0.00)$. One should however note the presence of a local minimum at $(0.10, 0.10)$, closer to the optimal packing fraction of the system. This fast compaction behaviour in the vicinity of the optimal packing fraction could have practical advantages for granular mixtures. Indeed, one could imagine preparing high density mixtures which have good flowing properties. As the rheology of granular matter is correlated with its compaction dynamics, the study of τ is consequently fundamental for optimization of density and rheology at the same time.

IV. DISCUSSION

A. Packing model

As we have seen, the packing fraction of a granular mixture can be enhanced by adding a fixed amount of small and large beads. The possibility of predicting the quantity of each species of particles to obtain the highest density is of great interest. Since segregation occurs in granular mixtures, it makes sense to apply our model developed in a previous work on binary mixtures [26] that takes into account the inhomogeneity of the system. Indeed, one can observe in Figure 1 that small particles percolate through pores between large beads and that the homogeneity is not guarantee at all.

For ternary mixtures, three extreme cases have to be considered : when there are more large beads than any other species (**I**), when there are more medium beads than any other species (**II**) and when there are more small beads than any other species (**III**). One supposes that the system can be described by three binary mixtures coexisting. The volume contributions will depend on the size ratio between each couple of species $\zeta = \frac{D_x}{D_y}$, $D_x > D_y$. One defines for each species a spatial distribution Ψ_L , Ψ_M and Ψ_S respectively for large, medium

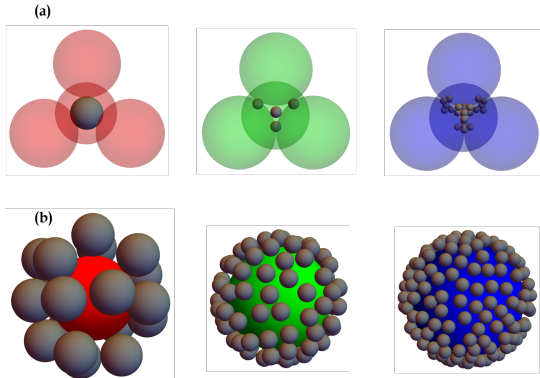


FIG. 4. Sketch of binary granular mixtures for three different grains size ratios : (red) $\zeta = 2$, (green) $\zeta = 6$, (blue) $\zeta = 9$. (a) Large beads dominate the small ones. One can see that the small particles fill more easily the voids between large ones when the size ratio increases. (b) Small beads dominate large ones. The presence of the large bead locally affects the random packing of the small ones on its surface.

and small particles. They follow the constraints

$$\int_{V^*} \Psi_i(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r}^3 = 1, \quad (3)$$

with $i = \{L, M, S\}$ and V^* being the normalized unit volume of the granular pile.

In case **(I)**, the apparent volume only depends on the structure of the large beads if one assumes that $\zeta \rightarrow \infty$. Indeed, the medium and small beads just fill the remaining voids as illustrated in Figure 4 (a) for $\zeta = 6$ and $\zeta = 9$. On the contrary, if $\zeta \rightarrow 1$, there must be no difference between large beads and the smaller ones and each species is randomly packed. In a binary mixture, the volume contribution of the smallest beads is proportional to $\frac{1}{\zeta}$. Consequently, one has for a ternary mixture that the volume contribution of respectively the medium and the small beads is proportional to $\frac{1}{\beta}$ and $\frac{1}{\gamma}$. If one takes into account each volume contribution, weighted by its corresponding distribution function, one has for the local apparent volume

$$V_I^{loc} = V \left(\frac{l}{\eta_L} \Psi_L + \frac{m}{\eta_M} \frac{1}{\beta} \Psi_M + \frac{s}{\eta_S} \frac{1}{\gamma} \Psi_S \right), \quad (4)$$

η_L , η_M and η_S being the packing fractions of the monodisperse medium respectively made of large, medium or small particles. They are supposed to depend on t and follow Eq. (2).

In case **(II)**, the mixture is a random packing of medium beads. The volume contribution from the small ones is inversely proportional to the size ratio between medium and small beads α , as previously explained. Moreover, one has to add an effective volume coming

from the large ones. Indeed, a large bead in the packing dominated by smaller ones will locally disturb the structure. Smaller particles of the main phase will surround large beads as illustrated in Figure 4 (b). At the surface, the kissing particles have locally a lower packing fraction than their surrounding neighbors. This leads to an effective volume for the large beads contribution [26]

$$V_{\text{eff}} \simeq V_i \left(1 + \frac{1}{\zeta} \right), \quad (5)$$

with ζ being the size ratio between the particles of the main phase and the larger particles. In this case, the main phase is constituted of particles of the species M and the larger ones are from the species L , giving $\zeta = \beta$. One has consequently

$$V_{II}^{loc} = V \left[l \left(1 + \frac{1}{\beta} \right) \Psi_L + \frac{m}{\eta_M} \Psi_M + \frac{s}{\eta_S} \frac{1}{\alpha} \Psi_S \right]. \quad (6)$$

In case **(III)**, the small beads are randomly packed. One has to add the effective volume coming from medium and large beads, according to their respective size ratio with small ones, such that

$$V_{III}^{loc} = V \left[l \left(1 + \frac{1}{\gamma} \right) \Psi_L + m \left(1 + \frac{1}{\alpha} \right) \Psi_M + \frac{s}{\eta_S} \Psi_S \right]. \quad (7)$$

Since $l = 1 - s - m$, one has three equations defining the local apparent volume depending on two independent variables s and m . The local apparent volume is defined as $V_a^{loc} = \max\{V_I^{loc}, V_{II}^{loc}, V_{III}^{loc}\}$. The total apparent volume is obtained by integration of V_a^{loc} over the normalized unitary volume V^* . One obtains the packing fraction by dividing the total real volume V by the total apparent volume, such that

$$\eta_\psi(s, m) = \frac{V}{\int_{V^*} \max\{V_I^{loc}, V_{II}^{loc}, V_{III}^{loc}\} \, d\mathbf{r}^3}. \quad (8)$$

One should remark that Eqs. (4), (6), (7) and (8) depend on the values of $\eta_L(t)$, $\eta_M(t)$ and $\eta_S(t)$ after a number of tap t . In order to compare the model with the final packing fraction obtained experimentally, we use the final packing fraction of each monodisperse phase $\eta_L(\infty) \approx \eta_M(\infty) \approx \eta_S(\infty) \approx 0.60$.

Since granular segregation occurs in the presence of gravity for mixtures with different particles sizes, one should use non-uniform distributions for Ψ_L , Ψ_M and Ψ_S . In this article, we propose the same approach that we used in our previous work [26]. As the segregation essentially influences the mixture along the height of the granular pile, one can simplify the distribution, depending only on the normalized height z . The distribution function Ψ_L is defined by

$$\Psi_L(z, p) = \begin{cases} 0 & ; z < p \\ \frac{1}{1-p} & ; z \geq p \end{cases}, \quad (9)$$

with p being a segregation parameter. It characterizes a layer of small and medium particles in a phase without large particles at the bottom of the packing ($z < p$), while large particles are still mixed with the rest of small and medium particles for $z > p$. We fixed $p \approx 0.12$, found in a previous work as best adjustment parameter [26]. The distribution Ψ_S is defined by

$$\Psi_S(z, s) = s + 2(1 - z)(1 - s). \quad (10)$$

It represents the fact that small particles can percolate in the porous medium made by large and medium particles. One assumes that this percolation leads to a gradient-like distribution of small particles. This gradient is supposed linear and steep when the mixture is dominated by large and medium particles. On the contrary, the gradient is supposed to be weak when s is low because small particles can hardly percolate when they dominate the mixture. Moreover, one should have a homogeneous distribution of small particles when $s \rightarrow 1$. One has to define a distribution Ψ_M , which has both small and large particle behaviours, depending on the dominant phase. We propose to combine Ψ_L and Ψ_S such that

$$\Psi_M(z, s, m) = (1 - s)\Psi_S(z, m) + s\Psi_L(z, p). \quad (11)$$

The result of Eq. (8) with the distributions (9), (10) and (11) is presented in Figure 3 (c). As one can see, the model reproduces the same tendency as the experimental data. An optimum for the packing fraction is found for the low values of medium and small beads, at (0.18, 0.31) with $\eta_{max} \approx 0.82$. The value and the position of this optimum are close to the experimental result.

Let us investigate more deeply the model by taking slices of the diagram and compare them to our data. Figure 5 presents three graphics, each of them having four curves with different values l , m or s fixed. These curves highlight the good agreement between the model and the experimental data. Figure 5 (a) presents four slices of the packing fraction landscape for different l . Both data and model enhance their maximum of packing fraction when l increases. This can be understood by the fact that the more large beads are added the more they constitute the main phase. Thereby, the other beads can fill voids between large beads and increase the packing fraction. In the same way, packing fraction for fixed m or s is presented in Figure 5 (b) and (c). When m is fixed, one observes an increase of packing fraction, when medium beads are added. If there are too many medium beads, the packing fraction decreases as they become the main phase. Indeed, the packing fraction is lower because $\alpha < \gamma$ such that small particles fill less efficiently the voids created by medium particles than those created by large particles.

One notes that the system evolves like a binary mixture when one of the species is fixed. However, this third species modify the behaviours of the mixture. The packing fraction of the system is then a competition between three species.

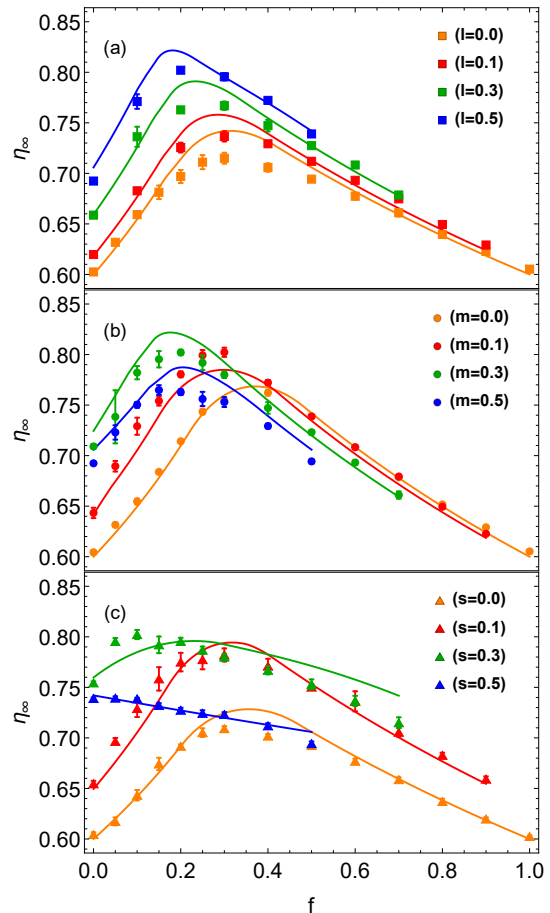


FIG. 5. Slices of the data and the model with the fraction of large, medium and small beads fixed respectively in parts (a), (b) and (c). The curves with the same dot comes from slice as presented by black curves in Figure 3 (c). The fraction f corresponds to the fraction of small particles s for the parts (a) and (b), and corresponds to the fraction of medium particles m for the part (c).

B. Dynamics model

Boutreux and de Gennes proposed more than two decades ago a model to describe the evolution of the dynamics of compaction for binary mixtures [23]. Their approach based on the packing fraction following an inverse logarithmic law inspired us. We propose here a model for τ based on Eqs. (4), (6) and (7). In the following, we only consider homogeneous mixtures. Indeed, in these cases, one can find analytical solutions. One defines $\eta_j = \frac{V_j}{V_j^{\text{loc}}} = \frac{V_j}{V_j^{\text{loc}}}$, $j = \{I, II, III\}$ with $\Psi_L = \Psi_M = \Psi_S = 1$. The global apparent volume V_j

is obtained by integration of V_j^{loc} . The derivative of Eq. (2) gives

$$\frac{d\eta}{dt} = \frac{1}{\tau} \frac{1}{1 + \frac{t}{\tau}} \frac{(\eta_\infty - \eta)^2}{\eta_\infty - \eta_0}. \quad (12)$$

One has at the beginning of compaction, i.e. when $t \rightarrow 0$, $\frac{d\eta}{dt} \simeq \frac{1}{\tau}$. We suggest that each species can be seen as a monodisperse phase with its own packing dynamics, i.e. $\frac{d\eta_L}{dt} \simeq \frac{1}{\tau_L}$, $\frac{d\eta_M}{dt} \simeq \frac{1}{\tau_M}$ and $\frac{d\eta_S}{dt} \simeq \frac{1}{\tau_S}$. One has by derivation of Eqs. (4), (6) and (7): $\frac{d\eta_I}{dt} \simeq \frac{1}{\tau_I}$, $\frac{d\eta_{II}}{dt} \simeq \frac{1}{\tau_{II}}$ and $\frac{d\eta_{III}}{dt} \simeq \frac{1}{\tau_{III}}$, such that

$$\tau_I \simeq \frac{\left(\frac{l}{\eta_L(0)} + \frac{m}{\eta_M(0)\beta} + \frac{s}{\eta_S(0)\gamma} \right)^2}{\frac{l}{\tau_L \eta_L^2(0)} + \frac{m}{\tau_M \eta_M^2(0)\beta} + \frac{s}{\tau_S \eta_S^2(0)\gamma}}, \quad (13)$$

$$\tau_{II} \simeq \frac{\left(l \left(1 + \frac{1}{\beta} \right) + \frac{m}{\eta_M(0)} + \frac{s}{\eta_S(0)\alpha} \right)^2}{\frac{m}{\tau_M \eta_M^2(0)} + \frac{s}{\tau_S \eta_S^2(0)\alpha}}, \quad (14)$$

and

$$\tau_{III} \simeq \frac{\left(l \left(1 + \frac{1}{\gamma} \right) + m \left(1 + \frac{1}{\alpha} \right) + \frac{s}{\eta_S(0)} \right)^2}{\frac{s}{\tau_S \eta_S^2(0)}}. \quad (15)$$

The packing fractions $\eta_L(0)$, $\eta_M(0)$ and $\eta_S(0)$ are independent of l , m and s . We consequently fix $\eta_L(0) = \eta_M(0) = \eta_S(0) = \eta_0^* = 0.56$ as a constant corresponding to the mean value of the monodisperse Random Loose Packing of each species.

One can remark that these equations diverge when $\alpha \rightarrow 0$. However, it has been experimentally observed that the compaction time diverges close to $\alpha^* \approx 5.5$, i.e. close to the jamming state [12]. We propose some approximations and modifications to these equations in order to obtain a practical and simple model. We then suggest to transform each size ratio $\frac{1}{\zeta}$ into $\frac{1}{\zeta - \alpha^*}$ in order to obtain the divergent behaviour at α^* . One consequently has

$$\tau_I \simeq \frac{\left(l + \frac{m}{\beta - \alpha^*} + \frac{s}{\gamma - \alpha^*} \right)^2}{\frac{l}{\tau_l} + \frac{m}{\tau_m(\beta - \alpha^*)} + \frac{s}{\tau_s(\gamma - \alpha^*)}}, \quad (16)$$

$$\tau_{II} \simeq \frac{\left(\eta_0^* l \left(1 + \frac{1}{\beta - \alpha^*} \right) + m + \frac{s}{\alpha - \alpha^*} \right)^2}{\frac{m}{\tau_m} + \frac{s}{\tau_s(\alpha - \alpha^*)}}, \quad (17)$$

and

$$\tau_{III} \simeq \frac{\left(\eta_0^* l \left(1 + \frac{1}{\gamma - \alpha^*} \right) + \eta_0^* m \left(1 + \frac{1}{\alpha - \alpha^*} \right) + s \right)^2}{\frac{s}{\tau_s}}. \quad (18)$$

The global compaction time is described by a competition between Eqs. (16), (17) and (18), depending on

which species constitutes the main phase, i.e. depending on s , m and l . Since the dynamics τ_I corresponds to a packing dominated by large particles, its contribution to the global compaction time should increase as the number of contact between two large particles increases. The probability of two kissing large particles is proportional to l^2 . The same argument can be applied for medium and small particles. We then propose a combination of τ_I , τ_{II} and τ_{III} , each term multiplied by the squared volume fraction of the supposed dominant phase such that

$$\tau(s, m, l) = l^2 \tau_I + m^2 \tau_{II} + s^2 \tau_{III}. \quad (19)$$

We fixed $\alpha = 6.0$ and $\gamma = 35.0$. One has to fix $\beta = 6.6$, in agreement with the relative error, in order to obtain a decreasing behaviour along the m axis as observed experimentally. The compaction times $\tau_L \approx 39.17$, $\tau_M \approx 57.34$ and $\tau_S \approx 75.00$ are fixed and correspond to the respective value of each pure species.

Figure 3 (d) presents the result of such modelling. Lowest values of τ are obtained when the packing is dominated by large particles mixed with medium and small ones. On the contrary, the largest values of τ are obtained for mixtures dominated by medium and small particles, along the diagonal. One observes a minimum at (0.33, 0.00), close to the minimum observed experimentally. This simplified approach highlights that lower τ can be obtained using ternary mixtures dominated by large particles but with a small quantity of medium and small particles, as observed experimentally. This model seems then able to reproduce some global behaviours of the compaction time although it could be improved in the future.

V. CONCLUSION

We observed the existence of an optimal packing, depending on the relative fraction of components with three possible sizes. We showed that a previously developed model [26] can be adapted to ternary mixtures and gives good predictions. This model could be useful to estimate the amount of each component to optimize the density of real ternary mixtures, taking into account the granular segregation. Indeed, since this phenomenon often occurs, it can be detrimental for density optimization to neglect the impact of the inhomogeneity.

We reported the existence of a local minimum of the typical compaction time τ at (0.10, 0.10) in the vicinity of the optimum of the packing fraction at (0.25, 0.20). This could be the start of future researches on the optimization of the density and the flowability at the same time. We proposed a model for the typical compaction time based on the packing model. One can summarize that lower compaction times can be obtained with mixture dominated by large particles with a small quantity of added medium and small particles.

Even if some global behaviours can be found, this model should be improved in order to better fit data. As

Boutreux and de Gennes suggested before [23], we hope that this attempt to describe the compaction dynamics depending on the mixture composition will lead to future works. The understanding and the prediction of the rheological properties of granular mixtures will undoubtedly improve with a model able to predict the density and the

flowability, with a same concept.

Acknowledgments – This study is conducted in the framework of the "PowderReg" project, funded by the European programme Interreg VA GR within the priority axis 4 "Strengthen the competitiveness and the attractiveness of the Grande Région / Großregion". We thank M. Marck for helping us to realize all the measurements.

-
- [1] B. Andreotti, Y. Forterre and O. Pouliquen, *Les milieux granulaires*, EDP sciences (CNRS, Paris, 2011).
- [2] D. Weaire & T. Aste, *The pursuit of perfect packing*, (CRC, New York, 2008).
- [3] M. Nicolas, P. Duru & O. Pouliquen, *Compaction of a granular material under cyclic shear*, Eur. Phys. J. E **3**, 309-314 (2000).
- [4] A. Panaitescu, K. A. Reddy & A. Kudrolli, *Nucleation and crystal growth in sheared granular sphere packings*, Phys. Rev. Lett. **108**, 108001 (2012).
- [5] G. Y. Onoda & E. G. Liniger, *Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2727 (1990).
- [6] J. G. Berryman, *Random close packing of hard spheres and disks*, Phys. Rev. A **27**, 1053 (1983).
- [7] R. S. Farr and R. D. Groot, *Close packing density of polydisperse hard spheres*, The Journal of chemical physics **131**, 244104 (2009).
- [8] J. S. Andrade Jr, H. J. Herrmann, R. F. Andrade, & L. R. Da Silva, *Apollonian networks: Simultaneously scale-free, small world, Euclidean, space filling, and with matching graphs*, Phys. Rev. Lett. **94**, 018702 (2005).
- [9] C. S. Chang, Y. Deng & Z. Yang, *Modeling of minimum void ratio for granular soil with effect of particle size distribution*, Journal of Engineering Mechanics **143**, 04017060 (2017).
- [10] Y. Hara, H. Mizuno and A. Ikeda, *Phase transition in the binary mixture of jammed particles with large size dispersity*, Phys. Rev. Research **3**, 023091 (2021).
- [11] I. Prasad, C. Santangelo and G. Grason, *Subjamming transition in binary sphere mixtures*, Phys. Rev. E **96**, 052905 (2017).
- [12] S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer & N. Vandewalle, *From jamming to fast compaction dynamics in granular binary mixtures*, Sci. Rep. **9**, 7281 (2019).
- [13] L. G. Li and A. K. H. Kwan, *Packing density of concrete mix under dry and wet conditions*, Powder technology **253**, 514-521 (2014).
- [14] M. R. Jones, L. Zheng and M. D. Newlands, *Comparison of particle packing models for proportioning concrete constituents for minimum voids ratio*, Materials and structures **35**, 301-309 (2002).
- [15] H. He, Z. Guo, P. Stroeven, M. Stroeven and L. J. Sluys, *Characterization of the packing of aggregate in concrete by a discrete element approach*, Materials characterization **60**, 1082-1087 (2009).
- [16] G. Fu & W. Dekelbab, *3-D random packing of polydisperse particles and concrete aggregate grading*, Powder Tech. **133**, 147-155 (2003).
- [17] K. Siliveru, C. G. Jange, J. W. Kwek & R. P. K. Ambrose, *Granular bond number model to predict the flow of fine flour powders using particle properties*, J. Food Eng. **208**, 11-18 (2017).
- [18] M. Capece, R. Ho, J. Strong and P. Gao, *Prediction of powder flow performance using a multi-component granular Bond number*, Powder Technol. **286**, 561-571 (2015).
- [19] M. Degaetano, L. Lacaze and J. C. Phillips, *The influence of localised size reorganisation on short-duration bidispersed granular flows*, Eur. Phys. J. E **36**, 1-9 (2013).
- [20] L. E. Vallejo, J. M. Espitia and B. Caicedo, *The influence of the fractal particle size distribution on the mobility of dry granular materials*, In EPJ Web of Conferences (Vol. 140, p. 03032), EDP Sciences (2017).
- [21] Z. Lai, L. E. Vallejo, W. Zhou, G. Ma, J. M. Espitia, B. Caicedo and X. Chang, *Collapse of granular columns with fractal particle size distribution: Implications for understanding the role of small particles in granular flows*, Geophys. Res. Lett. **44**, 12-181 (2017).
- [22] O. Molerus and M. Nywt, *The influence of the fine particle content of the flow behaviour of bulk materials*, Powder Technol. **37**, 145-154 (1984).
- [23] T. Boutreux and P. G. de Geennes, *Compaction of granular mixtures: a free volume model*, Physica A **244**, 59-67 (1997).
- [24] P. H. Borges, L. F. Fonseca, V. A. Nunes, T. H. Panzera and C. C. Martuscelli, *Andreasen particle packing method on the development of geopolymer concrete for civil engineering*, J. Mater. Civ. Eng. **26**, 692-697 (2014).
- [25] H. J. H. Brouwers and H. J. Radix, *Self-compacting concrete: theoretical and experimental study*, Cem. Concr. Res. **35**, 2116-2136 (2005).
- [26] S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer & N. Vandewalle, *How size ratio and segregation affect the packing of binary granular mixtures*, Soft Matter **9**, 7281 (2020).
- [27] G. Lumay, N. Vandewalle, C. Bodson, L. Delattre and O. Gerasimov, *Linking compaction dynamics to the flow properties of powders*, Appl. Phys. Lett. **89**, 093505 (2006).
- [28] N. Vandewalle, G. Lumay, F. Ludewig and J. E. Fiscina, *How relative humidity affects random packing experiments*, Phys. Rev. E **85**, 031309 (2012).
- [29] F. Soddy, *The kiss precise*, Nature **137**, 1021 (1936).
- [30] G. Lumay, F. Boschini, K. Traina, S. Bontempi, J. C. Remy, R. Cloots and N. Vandewalle, *Measuring the flowing properties of powders and grains*, Powder Technol. **224**, 19-27 (2012).
- [31] K. Traina, R. Cloots, S. Bontempi, G. Lumay, N. Vandewalle and F. Boschini, *Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement*, Powder Technol. **235**, 842-852 (2013).
- [32] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger & S. R. Nagel, *Density relaxation in a vibrated granular*

material, Phys. Rev. E **51**, 3957 (1995).
[33] S. V. Anishchik and N. N. Medvedev, *Three-dimensional*

apollonian packing as a model for dense granular systems,
Phys. Rev. Lett. **75**, 4314 (1995).

Chapitre 6

Systemes polydisperses

6.1 Problématique

Comme démontré dans le Chapitre 5, le modèle de compacité peut être adapté à un mélange de plus de deux espèces. Les matériaux granulaires étant souvent polydisperses, la recherche de l'optimum de compacité réclame un modèle plus général. Dans l'article suivant, soumis pour publication dans "Powder Technology", nous étendons le modèle du Chapitre 4 pour un mélange constitué de N espèces de particules, que nous répartissons en classes de différentes tailles. Nous étudions comment un tel modèle peut aider à améliorer la compacité des mélanges granulaires et nous le confrontons aux résultats expérimentaux. La dynamique de compaction est également analysée pour des mélanges avec un nombre de classes $N > 3$. Ensuite, nous discutons de quelle manière la compacité et la dynamique des mélanges granulaires peuvent être mieux comprises et améliorées.

6.2 Modèle

La démarche pour définir le modèle reste identique à celle du cas ternaire. Le mélange est constitué de N classes de particules avec pour diamètres $D_1 > D_2 > \dots > D_N$. On définit alors le rapport de tailles entre les classes successives $\alpha_{ij} = \frac{D_i}{D_j}$ et les fractions volumiques $f_n = \frac{V_n}{V}$, V_n étant le volume réel total de particules de la classe $n \in \{1, \dots, N\}$. On définit donc $V = \sum_{i=1}^N V_i$ le volume réel total de particules. Nous avons $\Psi_n(\mathbf{r})$ la distribution des particules de la classe n définie dans le volume normalisé V^* . Comme toutes les particules sont contenues dans la cellule, on pose la contrainte

$$\int_{V^*} \Psi_n(\mathbf{r}) \, dr^3 = 1. \quad (6.1)$$

Pour chaque cas extrême, on définit un volume apparent local

$$V_n^{loc}(\mathbf{r}) = V \sum_{i=1}^N \Psi_i(\mathbf{r}) f_i A(i, n), \quad (6.2)$$

avec

$$A(i, n) \begin{cases} 1 + \frac{1}{\alpha_{in}} & ; i < n \\ \frac{1}{\eta_i} \frac{1}{\alpha_{ni}} & ; i \geq n \end{cases} . \quad (6.3)$$

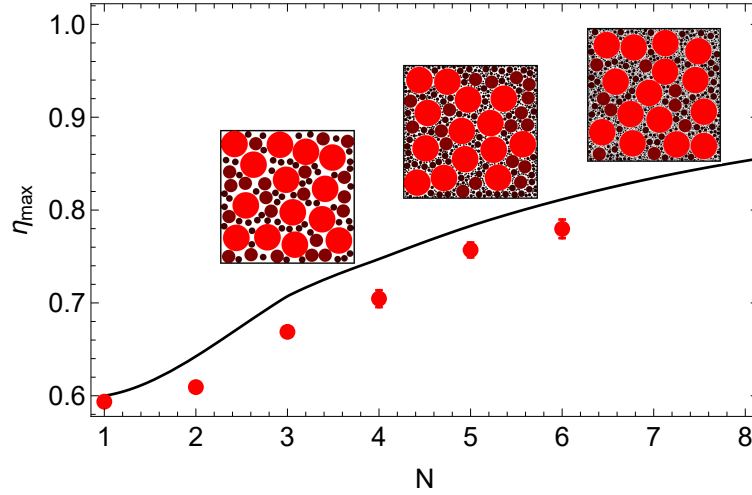


FIGURE 6.1 – Compacité optimale η_{max} en fonction du nombre de classes N pour $\alpha \approx 2$. Les points rouges représentent les résultats expérimentaux tandis que la courbe noire correspond aux prédictions du modèle pour un cas avec ségrégation. On a $\Psi_1(z) = 1$ et $\Psi_n(z) = f_n + 2(1 - f_n)(1 - z)$ pour $n = \{2, \dots, N\}$. Les images sur le graphique illustrent le remplissage de l'espace au fur et à mesure que le nombre de classes augmente.

La fonction $A(i, n)$ permet de rendre compte de la contribution volumique de chaque classe selon son rapport de tailles avec la classe principale n . De plus, chaque terme est pondéré par sa distribution Ψ_i . Le volume apparent global V_a est obtenu par intégration de $V_a^{loc} = \max\{V_n^{loc}\}$ sur V^* . On a donc pour la compacité

$$\eta(f_1, \dots, f_N) = \frac{V}{\int_{V^*} \max\{V_n^{loc}\} dr^3}. \quad (6.4)$$

6.3 Résultats principaux

Nous obtenons un bon accord entre ce modèle et les résultats expérimentaux. La Figure 6.1 présente l'évolution de η_{max} lorsque N augmente pour un rapport de tailles $\alpha \approx 2$ entre les classes successives. Dans le même esprit que pour l'empilement d'Apollonius, la compacité augmente à mesure que le nombre de classes utilisées augmente. La différence avec Apollonius est que nous avons dans notre cas un mélange désordonné, comme observé expérimentalement. La courbe noire sur la Figure 6.1 représente les prédictions du modèle, en supposant que les particules plus petites que la première classe percolent. Le détail du modèle est expliqué dans l'article qui suit. Sur base de l'équation (6.4), nous pouvons modéliser l'évolution de η_{max} en fonction de α et N . Les prédictions sont présentées sur la Figure 6.2. La compacité augmente avec le rapport de tailles et le nombre de classes. Les données expérimentales confirment cette tendance comme discuté dans l'article qui suit. Cependant, le cas limite $\alpha \rightarrow \infty$ et $N \rightarrow \infty$ ne correspond à aucun cas pratique. Créer un mélange avec un très grand nombre de classes et un rapport de tailles α suffisamment grand entre ces classes est complexe. Pour illustrer le problème, imaginons qu'on souhaite mélanger les gravillons d'environ 1 cm de diamètre avec des grains plus petits pour former un mélange de 10 classes avec $\alpha = 10$ entre chacune. Cela revient à supposer qu'il est possible manipuler des

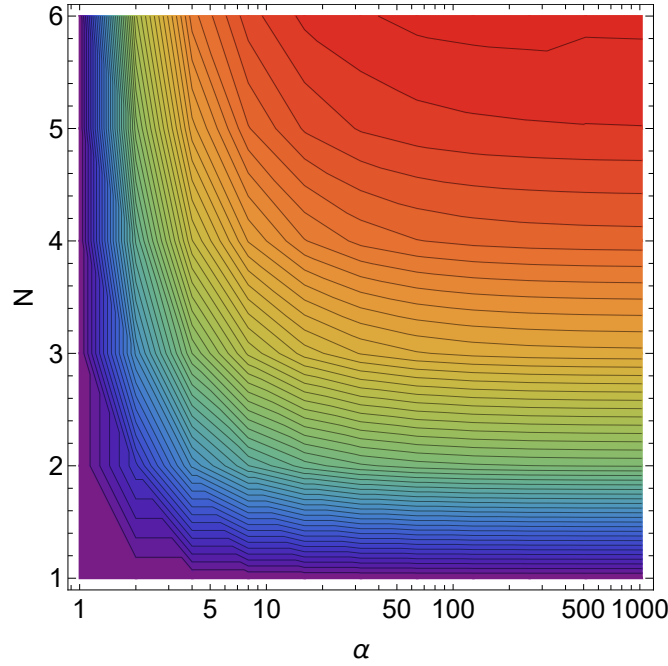


FIGURE 6.2 – Compacité maximale η_{max} en fonction du rapport de tailles α , sur une échelle logarithmique, et du nombre de classes N pour le cas avec ségrégation. Nous avons utilisé $\Psi_1(z) = 1$ et $\Psi_n(z) = G(f_n, z)$ pour $n = \{2, \dots, N\}$.

grains de 0.1 \AA pour la dernière classe ! Il n'est donc pas nécessaire de s'aventurer trop loin dans la zone supérieure droite de la Figure 6.2 puisqu'elle correspond à des cas irréalisables. En revanche, les prédictions le long des axes s'avèrent utiles.

Nous avons mesuré le temps typique de compaction τ pour les mélanges polydisperses optimaux. Nous présentons dans la Figure 6.3 l'évolution de τ en fonction du nombre de classes N pour $\alpha \approx 2$ et $\alpha \approx 3$. La courbe rouge affiche une augmentation suivie d'une décroissance après $N = 4$. Nous renvoyons à la Figure 4.5 pour rappeler l'évolution de τ en fonction de α . Une croissance suivie d'une décroissance aux alentours de $\alpha_* \approx 5.5$ sont obtenues pour un système bidisperse. Ici, le rapport de tailles entre la plus grande classe et la plus petite vaut α^{N-1} . Cela pourrait expliquer ce comportement puisque la croissance est maximale entre $N = 3$ et $N = 4$, qui correspondent justement à des rapports de tailles proche de $\alpha_* \approx 5.5$, avec $\alpha_{N=3} = 4$ et $\alpha_{N=4} = 8$. D'ailleurs, une décroissance pour $N = 6$ est observée, ce qui correspond à la décroissance dans le cas bidisperse, lorsque le rapport de tailles est très grand. Le cas $\alpha \approx 3$ semble présenter le même comportement mais de manière plus ténue. Entre $N = 2$ et $N = 3$, on passe rapidement d'un extrême à l'autre, et le rapport de tailles n'est jamais assez proche de α_* pour observer une croissance significative. Il est intéressant de constater que le rapport de tailles entre les classes extrêmes a une telle influence sur τ alors que sa proportion est généralement la plus faible.

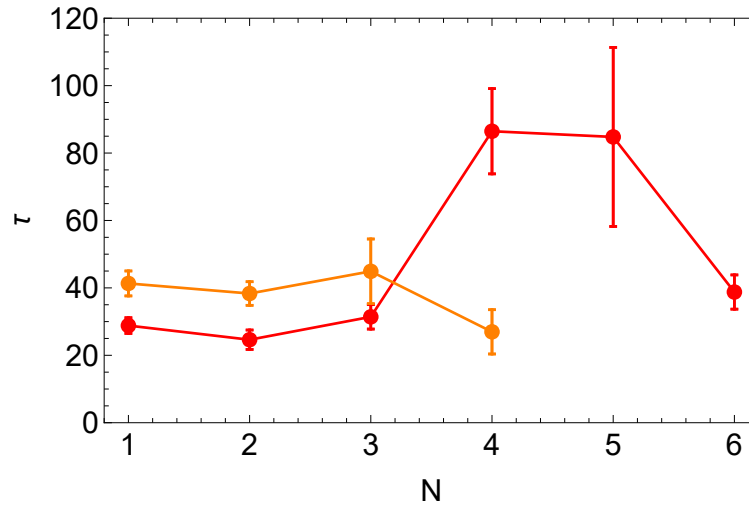


FIGURE 6.3 – Temps de compaction typique τ en fonction du nombre de classes N pour $\alpha \approx 2$, en rouge, et $\alpha \approx 3$, en orange.

6.4 Résumé

Avec le modèle que nous avons développé, il est possible de prédire la compacité d'un mélange granulaire quelque soit le rapport de tailles entre les classes, leur proportion relative, et le niveau d'hétérogénéité. L'optimum de compacité η_{max} peut être déterminé en considérant ces paramètres. Cela pourrait s'avérer très utile pour proportionner des mélanges granulaires tels que les bétons ou les poudres pharmaceutiques.

L'évolution de τ proche de l'optimum théorique de compacité a de nombreuses applications pratiques. En effet, on cherche souvent l'obtention d'un matériau avec une grande compacité mais également une bonne propriété d'écoulement. Cependant, τ étant un bon indicateur de coulabilité, il serait judicieux de tenir compte de cette évolution non monotone lorsqu'on compose un mélange granulaire.

Optimal packing fraction of polydisperse mixtures

Salvatore Pillitteri, Geoffroy Lumay, Eric Opsomer, and Nicolas Vandewalle
GRASP, Institute of Physics B5a, University of Liège, B4000 Liège, Belgium.

Abstract - Reaching high packing fractions is a common goal in industries manipulating granular materials. In most cases, granular materials of different particles sizes are mixed in order to improve the packing fraction. However, practical restrictions such as the minimum size of particles and the granular segregation are limiting factors for finding the optimal packing fraction. In this work, we have experimentally studied the impact of the number of particle sizes N in the mixture and the size ratio α between each particle size on the optimal packing fraction. We propose a model for the case of mixtures made of N size components, taking into account the possible segregation. The model confirms experimental findings and the predictions support an optimal size distribution close to the Andreasen model.

I. INTRODUCTION

Packing optimisation of granular materials is of great interest in many fields. By definition, the packing fraction is given by $\eta = \frac{V}{V_a}$, V being the real volume of particles in the system and V_a being the apparent volume that they occupy. Mixing particles of different sizes is a common way to increase the packing fraction as illustrated in Figure 1. Concrete is a relevant example of a granular mixture in which smaller particles are added to increase the packing fraction and then the performances of the material [1–4].

The relative proportions of each constituent tune the packing fraction. For this reason, many works attempted to model granular mixtures in order to predict the proportions of each component to reach the optimal packing fraction [5]. Andreasen proposed a semi-empirical model to predict the optimal granulometry [6]. This model was developed for mixtures with a continuous size distribution. By defining d the particle diameter, one has

$$P(d) = \left(\frac{d}{d_{max}} \right)^q, \quad (1)$$

where d_{max} is the largest particle diameter in the packing. The parameter q is a fitting parameter often assimilated to be a fractal dimension of the granular mixture [7–11].

This distribution was rapidly replaced by the modified Andreasen model [12]

$$P(d) = \frac{d^q - d_{min}^q}{d_{max}^q - d_{min}^q}, \quad (2)$$

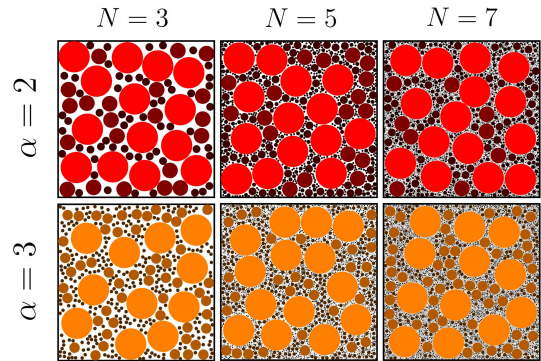


FIG. 1. Sketch of granular mixtures made of respectively from left to right 3, 5 and 7 classes. From the largest to the smallest, successive classes have their size divided by 2, for the top with red particles, and 3, for the bottom with orange particles. Voids are successively filled as the number of smaller classes are added in the system and the packing fraction increases accordingly.

where d_{min} is the lowest particle diameter in the packing. This model is considered to be more realistic since it introduces a cutoff size for the distribution. While this distribution is commonly used for soil and concrete designing [5], its empirical nature remains problematic. Indeed, the lack of physical meaning of the parameter q and the fact that its value is not well established promotes theoretical approaches.

Apollonius first theoretically explained how voids can be filled with spheres of decreasing sizes [13]. This model predicts the successive sizes and the relative fractions of spheres in order to fill all the remaining voids. However, it is impractical since the Apollonian sphere packing assumes a perfectly organized particle structure. Experimentally, granular materials are always disorganized and randomly structured. Indeed, many studies have shown that the packing fraction of identical spheres randomly placed is comprised between the Random Loose Packing $\eta_{RLP} \approx 0.55$, the lower possible packing fraction mechanically stable [14], and the Random Close Packing $\eta_{RCP} \approx 0.64$, the maximal experimentally reachable packing fraction [15, 16]. Since the particles are completely jammed in the latest state, the packing fraction saturates well before the optimal packing fraction $\eta_{fcc} = \frac{\pi}{3\sqrt{2}} \approx 0.74$, when the system corresponds to a face centered cubic (fcc) lattice [17].

Furnas developed a model for binary mixtures randomly packed [18]. If small and large particles have re-

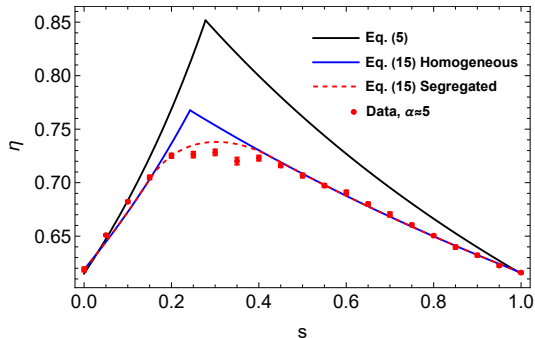


FIG. 2. Packing fraction obtained experimentally as a function of s , for a mixture with $\alpha \approx 5$ from [19]. The black curve is obtained with Eq. (5). The blue curve is obtained with Eq. (15) with homogeneous distributions while the red dashed one is obtained by considering a gradient-like distribution of small particles.

spectively a packing fraction η_m when they are monodisperse, the Furnas model considers two extreme apparent volumes, computing the volume contribution of each species,

$$V_I = \frac{1-s}{\eta_m} V, \quad (3)$$

under the assumption that the mixture is dominated by large particles and

$$V_{II} = \left(\frac{s}{\eta_m} + (1-s) \right) V, \quad (4)$$

under the assumption that the mixture is dominated by small particles. One has $s = \frac{V_S}{V}$ the volume fraction of small particles with $V = V_S + V_L$, V_S and V_L being respectively the real total volume of small and large particles. The packing fraction of the mixture is given by the ratio between the real volume V of particles and the apparent volume determined by the maximum between Eqs. (3) and (4). One has

$$\eta = \frac{V}{\max\{V_I, V_{II}\}}. \quad (5)$$

Figure 2 represents the Furnas model obtained with Eq. (5) by a black curve besides real data from [19]. One can observe that the model is a competition between Eq. (3), which gives the left curve, and Eq. (4), which gives the right curve. This leads to a peaked shape at the optimum of packing fraction.

This model can be generalized for a mixture of N particle sizes, or classes, defining f_1, \dots, f_N the volume fractions of the different classes, as long as the particles are able to fill the voids of the previous class. One defines N extreme cases, taking into account the volume contribution of each class in the same way as Eqs. (3) and (4).

At the optimum of packing fraction η_{max} , the volume fractions $f_1^{max}, \dots, f_N^{max}$ follow a geometric progression with a common ratio $\frac{1}{1-\eta_m}$.

Brouwers unified theoretically the discrete theoretical Furnas model and the continuous modified Andraesen model Eq. (2) [20]. Under the assumption that the mixture follows a geometrical packing one has

$$P(d) = \frac{d^q - \left(\frac{d_{min}}{\alpha}\right)^q}{d_{max}^q - \left(\frac{d_{min}}{\alpha}\right)^q}, \quad (6)$$

assuming that

$$q = \log_\alpha(g), \quad (7)$$

with $g = \frac{f_n^{max}}{f_{n+1}^{max}}$ being the ratio between fractions of successive classes and α the size ratio between successive classes. Taking the limit of an infinite number of classes $N \rightarrow \infty$ with contiguous sizes $\alpha \rightarrow 1$, this discrete law turns into the continuous Eq. (2). However, this model neglects the impact of segregation while homogeneity in granular media is not guaranteed. Indeed, granular segregation often happens experimentally. As a consequence, the packing fraction is lower than expected and the fraction of each constituent differs from a homogeneous system [21–23]. In addition, the size ratio α between particles has also an impact on the packing η . The packing fraction differs from the Furnas model as the size ratio between particles is close to unity [19]. In Figure 2, one can observe the difference between the prediction of the Furnas model and data for a binary mixture, in red, with $\alpha \approx 5$. The optimum predicted by Furnas $\eta_{max} \approx 0.85$ is significantly different from the optimum obtained experimentally $\eta_{max} \approx 0.73$.

In previous works, we developed a model for binary mixtures which takes into account for the size ratio α and for segregation [22, 23]. We propose in this article a model for a mixture of N different sizes of spheres which takes into account the inhomogeneity of the granular medium and the size ratio between particles. We compare this model with experimental results and predict the optimal packing fraction as a function of the number of size components used in the mixture. Furthermore, we compare our model to the law proposed by Brouwers.

II. METHODS

We performed our experiments with the GranuPack, from Granutools [24, 25]. The granular mixture is poured in a steel tube of 100 mm height. The diameter of this tube was 25 mm for data in Figure 3 and 37 mm for data in Figure 4. This tube performs free fall from a height of $\delta z = 1$ mm, at the frequency of 1 Hz, to densify the system. An initialization protocol is used in order to guarantee the reproducibility of the measurements. A narrower and open tube is inserted into the measurement

tube to be removed upward at a low and constant velocity $v = 1$ mm/s after being filled with the granular material. This procedure is automated in order to avoid the human intervention.

After each free fall, or "tap", a distance sensor measures the position of the top of the granular column. From this distance, the height h and the volume V of the pile are computed. As the introduced mass m of powder is known, the bulk density $\rho_{bulk} = \frac{m}{V}$ is computed. The packing fraction η is calculated by dividing the bulk density ρ_{bulk} by the true density $\rho_{true} \approx 2500$ kg/m³ of the material. In this way, one obtains the compaction curve $\eta(t)$ as a function of t , being the number of taps. The classical logarithmic law [26]

$$\eta(t) = \eta_{\infty} - \frac{\eta_{\infty} - \eta_0}{1 + \ln(1 + t/\tau)} \quad (8)$$

can reproduce the glassy behaviour of the curve $\eta(t)$. One has η_0 being the packing fraction at the beginning of the experiment, η_{∞} the asymptotic packing fraction, reached after an infinite number of taps and τ the typical number of taps needed to reach the saturation. By adjusting this model to the curve $\eta(t)$, one obtains the parameters η_{∞} and τ . In this work, we will compare our model to η_{∞} .

III. MODEL

Considering $d_1 > \dots > d_n > \dots > d_N$ the different particle diameters of the respective classes $n \in \{1, \dots, N\}$, one defines $\alpha_{ij} = \frac{d_i}{d_j}$ the size ratio between particles of the classes i and j . One defines the volume fraction for each class as

$$f_n = \frac{V_n}{V}, \quad (9)$$

with V_n the real volume occupied by the particles of the class n and V the total real volume occupied by all particles.

In order to take into account the inhomogeneity of the mixture, one considers for each class $\Psi_n(\mathbf{r})$ the distribution of particles of class n defined in the normalized volume V^* . These distributions follow the constrain

$$\int_{V^*} \Psi_n(\mathbf{r}) \, dr^3 = 1. \quad (10)$$

At each local level one considers N extreme cases, as for the generalized Furnas model. For each extreme case, one species n is more represented than the others. The particles are then classed in three categories : particles of the main phase n , particles larger than the main phase $i < n$ and particles smaller than the main phase $i > n$. Each extreme case is associated with a local apparent volume

$$V_n^{loc}(\mathbf{r}) = M_n^{loc} + L_n^{loc} + S_n^{loc}. \quad (11)$$

with M_n^{loc} , L_n^{loc} and S_n^{loc} respectively the local volume contribution of the main phase, larger particles and smaller particles. Each of these terms is a sum of the volume contributions of the different classes. These contributions are weighted by their corresponding distribution $\Psi_n(\mathbf{r})$ since they are defined locally. As a consequence the class representing the main phase depends on the position in the packing and on the volume fractions.

When there is more beads of the class n than the others, the apparent volume is dominated by the random structure of this species. Then the volume contribution of the main phase corresponds to a Random Close Packing. One has

$$M_n^{loc} = V \Psi_n(\mathbf{r}) \frac{f_n}{\eta_n}, \quad (12)$$

with η_n the monodisperse packing fraction of the class n .

Larger particles ($i < n$) will be surrounded by particles of class n . One has to compute the local volume contribution of large particles, $\Psi_i(\mathbf{r}) f_i \left(1 + \frac{1}{\alpha_{in}}\right) V$. The correction $\left(1 + \frac{1}{\alpha_{in}}\right)$ corresponds to the disturbance effect of larger particles on the class n . Indeed, the packing fraction is locally lower at the surface of the large particles as explained in [22]. One consequently has

$$L_n^{loc} = V \sum_{i=1}^{n-1} \Psi_i(\mathbf{r}) f_i \left(1 + \frac{1}{\alpha_{in}}\right). \quad (13)$$

Smaller particles ($i > n$) will fill the remaining voids between particles of class n as easily as the size ratio α_{ni} is large. Indeed, in the limit $\alpha_{ni} \rightarrow 1$, both species have the same radii and are in a Random Close Packing. On the contrary, when $\alpha_{ni} \rightarrow \infty$, the small particles fill the voids. For intermediate size ratios, small particles squeezed between particles of class n will dilate the system in one direction. Indeed, it has been shown that, in a granular mixture, a small particle is on average in contact with two large ones [27]. As a result, the volume contribution of the mixed part of particles smaller than class n corresponds to a Random Close Packing proportional to $\frac{1}{\alpha_{ni}}$ [22]. This factor is related to the filling ability of smaller particles. One consequently has

$$S_n^{loc} = V \sum_{i=n+1}^N \Psi_i(\mathbf{r}) \frac{f_i}{\eta_i} \frac{1}{\alpha_{ni}} \quad (14)$$

In the same way as for the Furnas model, the local apparent volume is defined as $V^{loc} = \max\{V_n^{loc}\}$. The global apparent volume V_a is obtained by integration of V^{loc} on the volume V^* . One obtains the packing fraction by dividing the total real volume V by V_a . One consequently has

$$\eta(f_1, \dots, f_N) = \frac{V}{\int_{V^*} \max\{V_n^{loc}\} \, dr^3}. \quad (15)$$

In the following, $\eta_n = \eta_{n'}$ will be fixed for any $n \neq n' \in \{1, \dots, N\}$. Indeed, if one neglects wall effect and cohesion

between particles, the packing fraction of a monodisperse phase is assumed to be independent of the particle size. One defines $f_1^{max}, \dots, f_N^{max}$ the volume fractions for which the optimal packing fraction η_{max} is found. From this set of volume fractions, one defines the cumulative volume fraction

$$P(d_n) = \sum_{i=n}^N f_i^{max}, \quad (16)$$

which is an equivalent of Eq. (6).

IV. DISCUSSION

The binary mixture is the simplest case of our approach. Figure 3 presents the optimal packing fraction η_{max} of experimental data as a function of $\alpha_{12} = \alpha$. Data is compared to our model, fixing $\eta_1 = \eta_2 = 0.61$. This value corresponds to the averaged monodisperse packing fraction of large and small particles. The dashed curve is obtained by considering a homogeneous mixture with $\Psi_1 = \Psi_2 = 1$. On the contrary, the plain one is obtained by considering a segregated mixture. Since small particles have the tendency to percolate, we propose to model this segregation by a gradient-like distribution for this species

$$G(f, z) = f + 2(1 - f)(1 - z). \quad (17)$$

Since percolation occurs essentially in the vertical direction, one can only consider the problem along the z axis such that $\Psi_2(\mathbf{r}) = G(f_2, z)$. One assumes that the mixture is homogeneous in the horizontal directions x and y . The triple integral in Eq. (15) can be then simplified to one integral on z . One remarks that the amplitude of the gradient depends on the volume fraction of small particles f_2 . Indeed, we suggest that the gradient should be linear and steep when the mixture is dominated by large particles. On the contrary, the gradient is supposed to be weak when f_2 is low because small particles can hardly percolate when they dominate the mixture. It tends to a homogeneous distribution when $f_2 \rightarrow 1$.

For the homogeneous case, one can see in Figure 3 that the curve has the same tendency as the experimental data but overestimates the packing fraction. The differences between model and experimental data are essentially due to the smooth optimum of experimental data as shown in Figure 2 in red dots. One can observe that the model Eq. (15) for a homogeneous mixture lead to a peaked shaped optimum that overestimates η_{max} . This problem is removed by considering the gradient-like distribution Eq. (17) for small particles. One can observe in Figure 2 that the model assuming the latest distribution gives a smooth optimum as for experimental data. The optimal packing fraction η_{max} is then better predicted as one can see in Figure 3 for all α values.

The optimal packing fraction increases with the size ratio α . One should note that both predictions and data

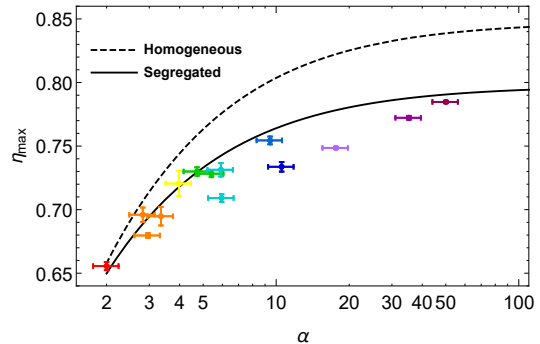


FIG. 3. Optimal packing fraction η_{max} as a function of the size ratio α in a logarithmic scale. The dashed curve corresponds to the model for a homogeneous case, while the plain one corresponds to the prediction of the model assuming in-homogeneities. For each curve, $\Psi_1 = 1$.

saturate at a specific packing fraction for large size ratios. Indeed, in the limit $\alpha \rightarrow \infty$, one has $\eta_{max} \approx 0.85$ for homogeneous mixtures and $\eta_{max} \approx 0.80$ for segregated mixtures for respectively $f_2 \approx 0.28$ and $f_2 \approx 0.33$. These examples highlight the huge impact of granular segregation on optimal packing fraction. Indeed, even for large size ratios, η_{max} is limited at a saturation value which drastically decreases when segregation increases.

The optimal packing fraction can be increased considering mixtures with a number of classes $N > 2$. We measured the optimal packing fraction for different mixtures, varying the number of classes N . In practice, the size range of particles is limited by the tube diameter of the experimental set-up. Consequently, we have chosen size ratios $\alpha = \alpha_{n, n+1}$ between successive classes $n \in \{1, N\}$, with $\alpha \approx 2$ and $\alpha \approx 3$. The results of experiments and model are presented in Figure 4. Experimental data were obtained by using the predicted fractions f_n^{max} of the model in the homogeneous case. The optimal packing fraction in the homogeneous case is represented by the dashed curves in red for $\alpha = 2$ and orange for $\alpha = 3$. One observes again that the model overestimates η_{max} because of the peaked shape at the optimum as explained previously. Using Eq. (17) for defining $\Psi_n(z) = G(f_n, z)$, $n \in \{2, \dots, N\}$ allows to avoid this problem. One keeps the large particles homogeneously distributed with Ψ_1 because they cannot percolate. One observes that data is effectively better fitted for the segregated case, represented by plain curves with the same color code. The same volume fractions were used.

For homogeneous cases, both dashed curves converge toward $\eta_{max} = 1$ when $N \rightarrow \infty$. The larger the size ratio the faster the packing fraction converges. This is related to the Apollonian gasket : each void left by particles of a class can be filled by particles from a smaller class. In this way, each void can be filled adding new smaller classes

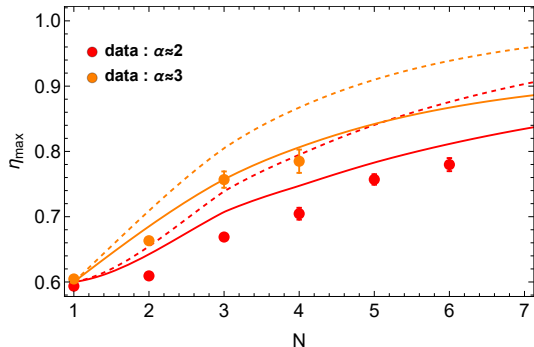


FIG. 4. Optimal packing fraction η_{max} as a function of the number of classes N for $\alpha \approx 2$ and $\alpha \approx 3$. The dashed curves correspond to the model for a homogeneous case while the plain ones correspond to the model with a gradient-like distribution for classes $n = \{2, \dots, N\}$.

until a total filling of space as illustrated in Figure 1.

One can summarize that the optimal packing fraction increases with the number of classes and the size ratio between them. As a consequence, the highest packing fraction would be obtained for a mixture with an infinite number of classes and an infinite size ratio. However, from a practical point of view, this solution is unrealistic since the range of particles sizes is limited experimentally. For concretes, the largest particles (granulate) are around $d \approx 1$ cm, while the smallest (silica fume) are around $d \approx 100$ nm. This corresponds to a range of five orders of magnitude.

While the prediction of the packing fraction according to size ratio and the number of classes is of great interest for granular mixtures designing, the volume fractions of each component to reach η_{max} remains one of the most important control parameter to investigate. For instance, the granulometry is greatly studied with continuous laws like Eqs. (1) and (2) to improve the optimal packing fraction [1–4]. In our case, this corresponds to Eq. (16).

In Figure 5, one can see the cumulative $P(d_n)$ predicted by our model for the homogeneous case with $N = 6$ and $\alpha = 10$ in blue symbols. The smallest class has a size $d_N = d_1 10^{-5}$. This range corresponds to the practical size limitation as discussed above. Here, we fixed $\eta_n = 0.6$ for any $n \in \{1, \dots, N\}$. As one can observe, our model differs from the black data which are obtained with the Furnas model. This illustrates well the impact of a finite value of α on the distribution and consequently the importance of taking into account the size ratio in packing models. Moreover, our model gives a size distribution similar to the law proposed by Brouwers Eq. (6).

In our model, $\frac{f_n^{max}}{f_{n+1}^{max}}$ is not constant for successive classes. However, one can estimate $g \simeq \langle \frac{f_n^{max}}{f_{n+1}^{max}} \rangle$ since the system remains close to a geometric packing. For the

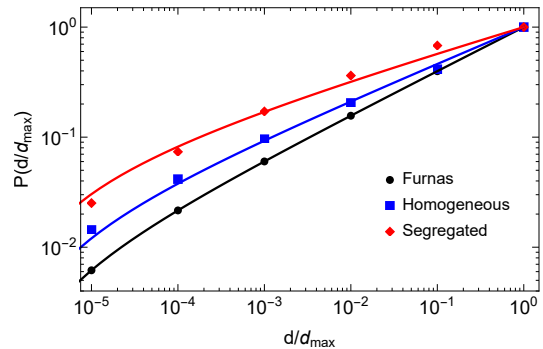


FIG. 5. Cumulative volume fraction as a function of the size of classes. The size ratio between each successive class is $\alpha = 10$. Our model (in color) and the Furnas model (in black) are compared to Eq. (6). Each set of data is fitted by the curve of the same color.

homogeneous case, $g \approx 2.12$, which gives $q \log_{10}(2.12) \approx 0.33$. One can effectively observe the good agreement between Eq. (6) and the cumulative of $P(d_n)$ predicted by our model. For the Furnas model, one has $g = \frac{1}{1-\eta_m} = 2.50$, which gives $q \approx 0.40$.

Granular segregation also has an impact on the fractions as observed in Figure 2. Indeed, the optimum for the segregated case is not found at the same point that the homogeneous case. One can see in Figure 5 the red symbols predicted by our model with respectively $\Psi_1 = 1$ and $\Psi_n = G(f_n, z)$ for $n > 1$. One observes that the distribution is moved upward due to segregation. This globally corresponds to a decrease of the parameter q in Eq. (6). One has $q \approx 0.23$ in this case. One notes that data is less well fitted by Eq. (6). This is because the system differs greatly from a geometric packing as segregation increases.

One figures out the advantages of our model since size ratio and segregation have a great impact on the optimal packing fraction and the volume fractions to reach it. Indeed, Eq. (15) has no fit parameter like Eqs. (1), (2) or (6) while keeping a Andreasen like behaviour.

An important point that should be addressed is that splitting or merging classes gives the same η_{max} . In Figure 6 are presented η_{max} as a function of N for $\alpha = 9$ and $\alpha = 4$, in black, and its respective equivalent, with $2N - 1$ classes, for $\alpha = 3$ and $\alpha = 2$, in red. Indeed, for a distribution with a size ratio α and N classes, one can merge classes two by two, which gives a size ratio α^2 between successive classes. The corresponding number of classes becomes $2N - 1$ to keep the same size ratio between the largest and the smallest classes. One should point out that there remains one class that cannot be merged with another because of the odd number of classes. One has to define a supplementary class $n = 0$ such that $d_0 = \alpha d_1$ and $f_0^{max} = 0$. This class can be combined with the first

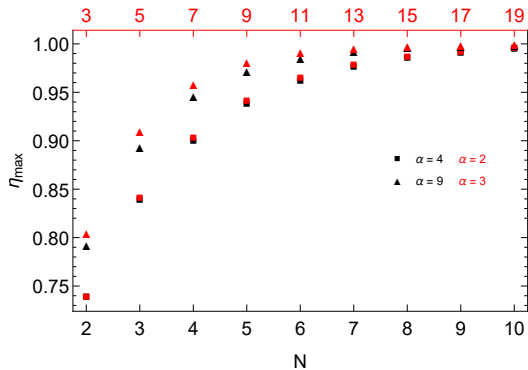


FIG. 6. Comparison of predicted η_{max} between non-split (in black) and splitted (in red) classes as a function of N . The number of classes for the black curves is represented by the bottom axis while it is represented by the top red axis for the red curves.

one and the rest of classes are merged two by two.

One observes in Figure 6 that the predicted η_{max} are similar for respective black and red curves. One notes that the packing fractions are closer between black and red squares than for triangles. Moreover, for both curves, the difference between black and red data decreases as the number of classes increases. It suggests that the predictions of η_{max} are robust as the number of classes increases and the size ratio decreases. Experimentally, one always has a continuous size distribution of particles, which corresponds to the limits of $N \rightarrow \infty$ and $\alpha \rightarrow 1$. The prediction of the discrete model are closer to a continuous distribution as N is great and α is low. Indeed, in this case, η_{max} varies little when splitting or merging classes. Consequently, using a discrete model to predict η_{max} for granular materials with a continuous size range makes sense as long as one considers enough classes.

V. CONCLUSION

We presented in this article our model for the case of N classes of particles sizes assuming a constant size ratio α between successive classes. This model takes into account the size ratio between particles and the homogeneity of the system. We compared this model with experimental results for the case of binary mixtures, taking into account the inhomogeneity of the system. We observed a good agreement between the model and data for the evolution of the optimal packing fraction η_{max} as a function of the size ratio α . Moreover, we analysed η_{max} depending on the number of classes N . We observed that adding smaller classes leads to $\eta_{max} = 1$ in the limit $N \rightarrow \infty$. However, segregation reduces this optimal packing fraction to a lower limit.

Our model predicts a discrete Andreasen-like distri-

bution of the fractions used to reach η_{max} . Indeed, in the homogeneous case, we observed that our model is well described by the discrete equivalent of the modified Andreasen model Eq. (6). We showed that segregation and size ratio in the mixture have a great impact on the η_{max} and on the size distribution of particles to reach this optimum and should be taken into account in the granulometry of granular materials for packing designing.

Moreover, compared to Eqs. (1), (2) and (6), an advantage of our model is that it can predict the packing fraction η for any set of volume fractions (f_1, \dots, f_N) with Eq. (15), when a specific packing fraction $\eta \neq \eta_{max}$ is required. In addition, non-constant size ratios between successive classes and various segregation conditions can be envisaged to modelize any mixture.

VI. APPENDIX

The model can be simplified considering a proportion of segregated particles for each class n instead of continuous distributions. Indeed, in this case, η_{max} and $f_1^{max}, \dots, f_N^{max}$ can be found with a matrix resolution problem, faster than a classical optimum search. One considers that each species can be either mixed with other species or segregated in a monodisperse phase. For each class n , one defines a proportion Ψ_n of segregated particles in a monodisperse phase and the rest ($1 - \Psi_n$) is homogeneously mixed with other classes.

As for the generalized Furnas model, one considers N extreme cases. For each of them, one species n is more represented than the others. The particles are then classed in three categories : particles of the main phase n , particles larger than the main phase $i < n$ and particles smaller than the main phase $i > n$. Each extreme case is associated with an apparent volume

$$V_n^a = M_n + L_n + S_n, \quad (18)$$

with M_n , L_n and S_n respectively the volume contribution of the main phase, the larger particles and the smaller particles.

When there are more beads of class n than any other, the apparent volume is dominated by the random structure of this species. Since the mixed and the segregated phases have both a random close packed structure, one has for the local volume contribution of the main phase

$$M_n = V \frac{f_n}{\eta_n}, \quad (19)$$

with η_n the monodisperse packing fraction of the class n .

Larger particles ($i < n$) will be surrounded by particles of class n . One has to compute the volume contribution of the mixed large particles $f_i (1 - \Psi_i) \left(1 + \frac{1}{\alpha_{in}}\right) V$. At the opposite, the segregated larger particles are randomly packed and their volume contribution is $f_i \frac{\Psi_i}{\eta_i} V$. One con-

sequently has

$$L_n = V \sum_{i=1}^{n-1} f_i \left(\frac{\Psi_i}{\eta_i} + (1 - \Psi_i) \left(1 + \frac{1}{\alpha_{in}} \right) \right). \quad (20)$$

Smaller particles ($i > n$) will fill the remaining voids between particles of class n as easily as the size ratio α_{ni} is large. The volume contribution of the mixed part of particles smaller than class n corresponds to a Random Close Packing proportional to $\frac{1}{\alpha_{ni}}$ [22]. The volume contribution of the segregated smaller particles corresponds to a normal Random Close Packing. One consequently has

$$S_n = V \sum_{i=n+1}^N \frac{f_i}{\eta_i} \left(\Psi_i + (1 - \Psi_i) \frac{1}{\alpha_{ni}} \right). \quad (21)$$

As Furnas suggests, the apparent volume of the system V_a corresponds to the largest V_n^a , $n \in \{1, \dots, N\}$. One obtains the packing fraction by dividing the total real volume V by V_a

$$\eta(f_1, \dots, f_N) = \frac{V}{\max\{V_n^a\}}. \quad (22)$$

The optimal packing fraction $\eta_{max} = \eta(f_1^{max}, \dots, f_N^{max})$ can be computed with a matrix equation. Indeed this optimum corresponds to the intersection of the hyperplanes V_n ; $n \in \{1, \dots, N\}$. This point is described by the system of equations

$$\begin{cases} V_1^a - V_2^a = 0 \\ V_1^a - V_3^a = 0 \\ \vdots \\ V_1^a - V_{N-1}^a = 0 \\ V_1^a - V_N^a = 0 \\ \sum_{n=1}^N f_n^{max} = 1 \end{cases} \quad (23)$$

The N first equations represent the intersection of the N hyperplanes described by V_n^a ; $n \in \{1, \dots, N\}$. The last condition results from the definition of the volume fractions Eq. (9) and gives a solvable system of N linear equations with N unknowns $f_1^{max}, \dots, f_N^{max}$.

Acknowledgments – This study is conducted in the framework of the "PowderReg" project, funded by the European programme Interreg VA GR within the priority axis 4 "Strengthen the competitiveness and the attractiveness of the Grande Région / Großregion". We thank M. Marck for helping us to realize all the measurements.

-
- [1] L. G. Li and A. K. H. Kwan, *Packing density of concrete mix under dry and wet conditions*, Powder technology **253**, 514-521 (2014).
- [2] C. S. Chang and Y. Deng, *A nonlinear packing model for multi-sized particle mixtures*, Powder Tech. **336**, 449-464 (2018).
- [3] H. He, Z. Guo, P. Stroeven, M. Stroeven and L. J. Sluys, *Characterization of the packing of aggregate in concrete by a discrete element approach*, Materials characterization **60**, 1082-1087 (2009).
- [4] G. Fu and W. Dekelbab, *3-D random packing of polydisperse particles and concrete aggregate grading*, Powder Tech. **133**, 147-155 (2003).
- [5] M. G. Sohail, B. Wang, A. Jain, R. Kahraman, N. G. Ozerkan, B. Gencturk, M. Dawood and A. Belarbi, *Advancements in concrete mix designs: High-performance and ultrahigh-performance concretes from 1970 to 2016*, J. Mater. Civ. Eng. **30**, 04017310 (2018).
- [6] A. H. M. Andreasen, *Über die Beziehung zwischen Kornabstufung und Zwischenraum in Produkten aus losen Körnern (mit einigen Experimenten)*, Kolloid-Zeitschrift **50**, 217-228 (1930).
- [7] S. V. Anishchik and N. N. Medvedev, *Three-dimensional apollonian packing as a model for dense granular systems*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4314 (1995).
- [8] Y. Xiao, H. Liu, Q. Chen, L Long and J. Xiang, *Evolution of particle breakage and volumetric deformation of binary granular soils under impact load*, Granul. Matter **19**, 1-10 (2017).
- [9] G. Leonardi, *Fractal dimension for the characterization of asphalt mixture properties*, Am. J. Appl. Sci. **13**, 877-882 (2016).
- [10] S. K. Sebsadji and K. Chouicha, *Fractal dimension of concrete mix gradation: a quantitative parameter for some concrete properties*, In MATEC Web of Conferences **307**, 01049 (2020).
- [11] I. Einav, *Breakage mechanics—part I: theory*, J. Mech. Phys. Solids **55**, 1274-1297 (2007).
- [12] D. R. Dinger and J. E. Funk, *Particle-packing phenomena and their application in materials processing*, Mrs Bulletin **22**, 19-23 (1997).
- [13] S. V. Anishchik and N. N. Medvedev, *Three-dimensional apollonian packing as a model for dense granular systems*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4314 (1995).
- [14] G. Y. Onoda and E. G. Liniger, *Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2727 (1990).
- [15] C. Song, P. Wang and H. A. Makse, *A phase diagram for jammed matter*, Nature **453**, 629-632 (2008).
- [16] J. G. Berryman, *Random close packing of hard spheres and disks*, Phys. Rev. A **27**, 1053 (1983).
- [17] D. Weaire and T. Aste, *The pursuit of perfect packing*, (CRC Press, New York, 2008).
- [18] C. C. Furnas, *Grading aggregates-I.-Mathematical relations for beds of broken solids of maximum density*, Ind. Eng. Chem. Res. **23**, 1052-1058 (1931).
- [19] S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *From jamming to fast compaction dynamics in granular binary mixtures*, Sci. Rep. **9**, 7281 (2019).
- [20] H. J. H. Brouwers, *Particle-size distribution and packing*

- fraction of geometric random packings*, Phys. Rev. E **74**, 031309 (2006).
- [21] T. J. Fiske, S. B. Raikar and D. M. Kalyon, *Effects of segregation on the packing of spherical and nonspherical particles*, Powder Technol. **81**, 57-64 (1994).
- [22] S. Pillitteri, E. Opsomer, G. Lumay and N. Vandewalle, *How size ratio and segregation affect the packing of binary granular mixtures*, Soft Matter **16**, 9094-9100 (2020).
- [23] S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Forced segregation in binary granular mixtures*, EPJ Web of Conferences **249**, 02001 (2021).
- [24] G. Lumay, F. Boschini, K. Traina, S. Bontempi, J. C. Remy, R. Cloots and N. Vandewalle, *Measuring the flowing properties of powders and grains*, Powder Technol. **224**, 19-27 (2012).
- [25] K. Traina, R. Cloots, S. Bontempi, G. Lumay, N. Vandewalle, and F. Boschini, *Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement*, Powder Technol. **235**, 842-852 (2013).
- [26] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Density relaxation in a vibrated granular material*, Phys. Rev. E **51**, 3957 (1995).
- [27] L. Meng, P. Lu and S. Li, *Packing properties of binary mixtures in disordered sphere systems*, Particuology **16**, 155-166 (2014).

Chapitre 7

Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse est d'étudier la manière dont le processus de compaction dépend des conditions de vibration et de la composition du milieu afin de mieux comprendre ce phénomène et de pouvoir l'optimiser. Dans un premier temps, nous avons étudié l'impact des conditions de vibration sur la dynamique de compaction. Ensuite, en fixant ces conditions de vibration, nous avons étudié l'effet de la granulométrie sur les résultats.

Nous avons vu que l'amplitude de compaction $\Delta\eta$ ainsi que la vitesse initiale de compaction μ_0 dépendent fortement du rapport d'aspect de la cellule L/D et de la direction de vibration. Pour un rapport $L/D \gg 1$, nous avons observé que $\Delta\eta$ et μ_0 sont généralement plus élevés lorsque la vibration est appliquée verticalement. Ces mesures donnent cependant des résultats similaires lorsque le rapport d'aspect de la cellule diminue. Lorsqu'on souhaite un processus de compaction efficace et rapide, ce résultat suggère que la compaction verticale doit être privilégiée lorsque la cellule est plus haute que large. Nous avons également observé que $\Delta\eta$ et μ_0 sont proportionnels à $A\omega$. Cela semble indiquer que la vitesse d'oscillation, et dans une certaine mesure l'énergie cinétique associée, contrôlent le processus de compaction. Un lien de proportionnalité a été mis en évidence entre le temps typique de compaction τ et le rapport $\Delta\eta/\mu_0$. De plus, nous avons décelé une similitude entre le comportement de la dérivée $\frac{d\eta}{dt}$ et la mobilité des grains μ mesurée par Lumay *et al.* [97]. Ce résultat pourrait justifier l'interprétation de τ comme un indicateur de bonne ou mauvaise coulabilité d'un matériau granulaire.

Au fil des chapitres, nous avons progressivement augmenté le nombre d'espèces granulaires, séparées par un rapport de tailles α , et nous avons étudié l'effet des mélanges de grains de différentes tailles sur la compacité et la dynamique de compaction. Nous avons développé un modèle pour la compacité η intégrant des paramètres de contrôle avec une interprétation physique directe. Un grand avantage de ce modèle est sa capacité à tenir compte de la ségrégation dans le mélange granulaire en introduisant les distributions des différentes espèces. Bien qu'il soit difficile de les connaître expérimentalement, il est envisageable de confronter ce modèle avec des simulations numériques pour lesquelles ces distributions seraient plus facilement imposées. La recherche de l'optimum de compacité est un objectif courant dans les matériaux granulaires. Notre modèle permet de prédire la fraction de chaque classe constituant le mélange pour atteindre cet optimum. Remarquons que tous les autres paramètres pouvant influencer la compacité sont implicitement contenus dans les compacités de chaque espèce en phase monodisperse η_n .

Nous avons vu que la dynamique de compaction, caractérisée par τ dépend fortement des mélanges. Plus particulièrement, nous avons mis en lumière une divergence de ce temps

de compaction dans un mélange bidisperse aux abords d'un rapport de tailles proche du seuil de percolation. Ce résultat rappelle les observations de Prasad *et al.* [102] et d'autres travaux numériques [109,110], où la mobilité des grains diminue très fortement aux abords du même rapport de tailles. Les compositions pour lesquelles cette divergence apparaît en simulation sont également proches de nos observations expérimentales. Nous avons de ce fait mis en évidence ce phénomène via une mesure macroscopique du "blocage". Ce même résultat semble également pouvoir expliquer l'évolution de τ en fonction du nombre de classes utilisées dans le mélange.

Sur base de l'évolution de η et τ en fonction des paramètres de contrôle déterminés dans ce travail, il serait donc possible de composer un mélange granulaire d'une grande compacité tout en ayant une dynamique de compaction rapide et ainsi de bonnes propriétés d'écoulement. L'optimum de compacité n'étant pas forcément obtenu pour la même composition granulaire que l'optimum de dynamique, le compromis entre ces deux aspects peut être complexe à atteindre d'où la nécessité d'un modèle pouvant prédire η et τ dans un même formalisme. Nous avons proposé une première approche pour modéliser τ en fonction des fractions des constituants et de leur rapport de tailles. Cette approche semble reproduire certains comportements globaux mais devrait être améliorée dans le futur. Nous espérons que notre modèle pourra susciter des idées pour des études futures visant à améliorer la modélisation et la préparation des mélanges granulaires.

Bibliographie

- [1] P. G. de Gennes, *Granular matter : a tentative view*, Rev. Mod. Phys. **71**, 374 (1999).
- [2] R. L. Brown and J. C. Richards, *Principles of powder mechanics : essays on the packing and flow of powders and bulk solids*, (Pergamon Press, Oxford, 1970).
- [3] F. Ludewig, *Contribution aux approches numériques de la densification d'assemblées granulaires*, (Doctoral dissertation, Université de Liège, 2006).
- [4] B. Andreotti, Y. Forterre and O. Pouliquen, *Les milieux granulaires*, (CNRS, Paris, 2011).
- [5] C. Coste and B. Gilles, *On the validity of Hertz contact law for granular material acoustics*, Eur. Phys. J. B **7**, 155-168 (1999).
- [6] M. Machado, P. Moreira, P. Flores and H. M. Lankarani, *Compliant contact force models in multibody dynamics : Evolution of the Hertz contact theory*, Mech. Mach. Theory **53**, 99-121 (2012).
- [7] L. F. Orozco, D. H. Nguyen, J. Y. Delenne, P. Sornay and F. Radjai, *Discrete-element simulations of comminution in rotating drums : Effects of grinding media*, Powder Technol. **362**, 157-167 (2020).
- [8] F. Lominé, *Écoulements de particules dans un milieu poreux*, (Doctoral dissertation, Université Rennes 1, 2007).
- [9] P. E. Peyneau and J. N. Roux, *Frictionless bead packs have macroscopic friction, but no dilatancy*, Phys. Rev. E **78**, 011307 (2008).
- [10] A. Rescaglio, J. Schockmel, F. Francqui, N. Vandewalle and G. Lumay, *How triboelectric charges modify powder flowability*, Annual Transactions of The Nordic Rheology Society **25**, 17-21 (2017).
- [11] A. Rescaglio, F. De Smet, L. Aerts and G. Lumay, *Tribo-electrification of pharmaceutical powder blends*, Particul. Sci. and Technol., (2019).
- [12] V. Lee, N. M. James, S. R. Waitukaitis and H. M. Jaeger, *Collisional charging of individual submillimeter particles : Using ultrasonic levitation to initiate and track charge transfer*, Phys. Rev. Mater. **2**, 035602 (2018).
- [13] A. G. Kline, M. X. Lim and H. M. Jaeger, *Precision measurement of tribocharging in acoustically levitated sub-millimeter grains*, Rev. Sci. Instrum. **91**, 023908 (2020).
- [14] D. J. Lacks and T. Shinbrot, *Long-standing and unresolved issues in triboelectric charging*, Nat. Rev. Chem. **3**, 465-476 (2019).
- [15] G. Grosjean, S. Wald, J. C. Sobarzo and S. Waitukaitis, *Quantitatively consistent scale-spanning model for same-material tribocharging*, Phys. Rev. Mater. **4**, 082602 (2020).

- [16] J. C. Laurentie, P. Traoré and L. Dascalescu, *Discrete element modeling of triboelectric charging of insulating materials in vibrated granular beds*, Journal of Electrostatics **71**, 951-957 (2013).
- [17] A. Mehrotra, F. J. Muzzio and T. Shinbrot, *Spontaneous separation of charged grains*, Phys. Rev. Lett. **99**, 058001 (2007).
- [18] G. Lumay, F. Boschini, K. Traina, S. Bontempi, J. C. Remy, R. Cloots and N. Vandewalle, *Measuring the flowing properties of powders and grains*, Powder Technol. **224**, 19-27 (2012).
- [19] W. Gao, T. Mogi, J. Yu, X. Yan, J. Sun and R. Dobashi, *Flame propagation mechanisms in dust explosions* J. Loss Prev. Process Ind. **36**, 186-194 (2015).
- [20] K. L. Johnson, K. Kendall and A. Roberts, *Surface energy and the contact of elastic solids*, Proc. R. Soc. A **324**, 301-313 (1971).
- [21] B. V. Derjaguin, V. M. Muller and Y. P. Toporov, *Effect of contact deformations on the adhesion of particles*, J. Colloid Interface Sci. **53**, 314-326 (1975).
- [22] J. E. Fiscina, M. Pakpour, A. Fall, N. Vandewalle, C. Wagner and D. Bonn, *Dissipation in quasistatically sheared wet and dry sand under confinement*, Phys. Rev. E **86**, 020103 (2012).
- [23] J. E. Fiscina, G. Lumay, F. Ludewig and N. Vandewalle, *Compaction dynamics of wet granular assemblies*, Phys. Rev. Lett. **105**, 048001 (2010).
- [24] A. Rescaglio, J. Schockmel, N. Vandewalle and G. Lumay, *Combined effect of moisture and electrostatic charges on powder flow*, EPJ Web Conferences **140** 13009 (2017).
- [25] L. Bocquet, E. Charlaix and F. Restagno, *Physics of humid granular media*, C. R. Phys. **3**, 207-215 (2002).
- [26] F. M. Orr, L. E. Scriven and A. P. Rivas, *Pendular rings between solids : meniscus properties and capillary force*, J. Fluid Mech. **67**, 723-742 (1975).
- [27] T. C. Halsey and A. J. Levine, *How sandcastles fall*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3141 (1998).
- [28] F. Pacheco-Vázquez, F. Moreau, N. Vandewalle and S. Dorbolo, *Sculpting sandcastles grain by grain : Self-assembled sand towers*, Phys. Rev. E **86**, 051303 (2012).
- [29] H. M. Jaeger, S. R. Nagel and R. P. Behringer, *Granular solids, liquids, and gases*, Rev. Mod. Phys. **68**, 1259 (1996).
- [30] Y. Forterre and O. Pouliquen, *Flows of dense granular media*, Annu. Rev. Fluid Mech. **40**, 1-24 (2008).
- [31] H. A. Janssen, *Versuche uber getreidedruck in silozellen*, Z. Ver. Dtsch. Ing. **39**, 1045-1049 (1895).
- [32] K. E. Daniels, J. E. Kollmer and J. G. Puckett, *Photoelastic force measurements in granular materials*, Rev. Sci. Inst. **88**, 051808 (2017).
- [33] M. Sperl, *Experiments on corn pressure in silo cells—translation and comment of Janssen's paper from 1895*, Granular Matter **8**, 59-65 (2006).
- [34] Y. Oyama, *The motion of binary particle in a horizontally rotating tube*, Bull. Inst. Phys. Chem. Res. Jpn. Rep. **18**, 600-639 (1939).
- [35] H. Caps, R. Michel, N. Lecocq and N. Vandewalle, *Long lasting instabilities in granular mixtures*, Phys. A : Stat. Mech. Appl. **326**, 313-321 (2003).

- [36] G. Lumay, F. Boschini, R. Cloots and N. Vandewalle, *Cascade of granular flows for characterizing segregation*, Powder Technol. **234**, 32-36 (2013).
- [37] A. Rosato, K. J. Strandburg, F. Prinz and R. H. Swendsen, *Why the Brazil nuts are on top : Size segregation of particulate matter by shaking*, Phys. Rev. Lett. **58**, 1038 (1987).
- [38] A. P. Breu, H. M. Ensner, C. A. Kruelle and I. Rehberg, *Reversing the Brazil-nut effect : competition between percolation and condensation*, Phys. Rev. Lett. **90**, 014302 (2003).
- [39] S. Godoy, D. Risso, R. Soto and P. Cordero, *Rise of a Brazil nut : A transition line*, Phys. Rev. E **78**, 031301 (2008).
- [40] J. B. Knight, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Vibration-induced size separation in granular media : The convection connection*, Phys. Rev. Lett. **70**, 3728 (1993).
- [41] A. Saez, F. Vivanco and F. Melo, *Size segregation, convection, and arching effect*, Phys. Rev. E **72**, 021307 (2005).
- [42] H. A. Makse, S. Havlin, P. R. King and H. E. Stanley, *Spontaneous stratification in granular mixtures*, Nature **386**, 379-382 (1997).
- [43] A. P. Breu, H. M. Ensner, C. A. Kruelle and I. Rehberg, *Reversing the Brazil-nut effect : competition between percolation and condensation*, Phys. Rev. Lett. **90**, 014302 (2003).
- [44] H. Xiao, D. McDonald, Y. Fan, P. B. Umbanhowar, J. M. Ottino and R. M. Lueptow, *Controlling granular segregation using modulated flow*, Powder Technol. **312**, 360-368 (2017).
- [45] N. Kholá and C. Wassgren, *Correlations for shear-induced percolation segregation in granular shear flows*, Powder Technol. **288**, 441-452 (2016).
- [46] A. Jain, M. J. Metzger and B. J. Glasser, *Effect of particle size distribution on segregation in vibrated systems*, Powder Technol. **237**, 543-553 (2013).
- [47] O. Reynolds, *LVII. On the dilatancy of media composed of rigid particles in contact. With experimental illustrations*, Philos. Mag. **20**, 469-481 (1885).
- [48] D. M. Wood, *Soil behaviour and critical state soil mechanics*, (CUP, Cambridge, 1990).
- [49] A. Pascot, N. Gaudel, S. Antonyuk, J. Bianchin and S. K. De Richter, *Influence of mechanical vibrations on quasi-2D silo discharge of spherical particles*, Chem. Eng. Sci. **224**, 115749 (2020).
- [50] A. N. Schofield and P. Wroth, *Critical state soil mechanics*, (McGraw-Hill, London, 1968).
- [51] C. Song, P. Wang and H. A. Makse, *A phase diagram for jammed matter*, Nature **453**, 629-632 (2008).
- [52] G. Y. Onoda and E. G. Liniger, *Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2727 (1990).
- [53] J. M. Valverde and A. Castellanos, *Random loose packing of cohesive granular materials*, EPL **75**, 985 (2006).
- [54] J. G. Berryman, *Random close packing of hard spheres and disks*, Phys. Rev. A **27**, 1053 (1983).
- [55] G. D. Scott and D. M. Kilgour, *The density of random close packing of spheres*, J. Phys. D : Appl. Phys. **2**, 863 (1969).

- [56] J. D. Bernal and J. Mason, *Packing of spheres : co-ordination of randomly packed spheres*, Nature **188**, 910-911 (1960).
- [57] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Density relaxation in a vibrated granular material*, Phys. Rev. E **51**, 3957 (1995).
- [58] N. Vandewalle, G. Lumay, F. Ludewig and J. E. Fiscina, *How relative humidity affects random packing experiments*, Phys. Rev. E **85**, 031309 (2012).
- [59] F. Boschini, V. Delaval, K. Traina, N. Vandewalle and G. Lumay, *Linking flowability and granulometry of lactose powders*, Int. J. Pharm. **494**, 312-320 (2015).
- [60] K. Traina, R. Cloots, S. Bontempi, G. Lumay, N. Vandewalle and F. Boschini, *Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement*, Powder Technol. **235**, 842-852 (20013).
- [61] A. Saker, M. G. Cares-Pacheco, P. Marchal and V. Falk, *Powders flowability assessment in granular compaction : What about the consistency of Hausner ratio ?*, Powder Technol. **354**, 52-63 (2019).
- [62] G. Lumay, N. Vandewalle, C. Bodson, L. Delattre and O. Gerasimov, *Linking compaction dynamics to the flow properties of powders*, Appl. Phys. Lett. **89**, 093505 (2006).
- [63] D. Weaire and T. Aste, *The pursuit of perfect packing*, (CRC Press, New York, 2008).
- [64] G. Lumay and N. Vandewalle, *Experimental study of the compaction dynamics for two-dimensional anisotropic granular materials*, Phys. Rev. E **74**, 021301 (2006).
- [65] P. Philippe and D. Bideau, *Compaction dynamics of a granular medium under vertical tapping*, EPL **60**, 677 (2002).
- [66] P. Philippe and D. Bideau, *Granular medium under vertical tapping : Change of compaction and convection dynamics around the liftoff threshold*, Phys. Rev. Lett. **91**, 104302 (2003).
- [67] T. Hao, *Tap density equations of granular powders based on the rate process theory and the free volume concept*, Soft Matter **11**, 1554-1561 (2015).
- [68] T. Boutreux and P. G. de Geennes, *Compaction of granular mixtures : a free volume model*, Phys. A : Stat. Mech. Appl. **244**, 59-67 (1997).
- [69] J. A. Dijksman and M. van Hecke, *The role of tap duration for the steady-state density of vibrated granular media*, EPL **88**, 44001 (2009).
- [70] D. Arsenović, S. B. Vrhovac, Z. M. Jakšić, L. Budinski-Petković and A. Belić, *Simulation study of granular compaction dynamics under vertical tapping*, Phys. Rev. E **74**, 061302 (2006).
- [71] X. Z. An, C. X. Li, R. Y. Yang, R. P. Zou and A. B. Yu, *Experimental study of the packing of mono-sized spheres subjected to one-dimensional vibration*, Powder Technol. **196**, 50-55 (2009).
- [72] E. R. Nowak, J. B. Knight, E. Ben-Naim, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Density fluctuations in vibrated granular materials*, Phys. Rev. E **57**, 1971 (1998).
- [73] P. Ribiere, P. Richard, P. Philippe, D. Bideau and R. Delannay, *On the existence of stationary states during granular compaction*, Eur. Phys. J. E **22**, 249-253 (2007).
- [74] E. R. Nowak, J. B. Knight, M. L. Povinelli, H. M. Jaeger and S. R. Nagel, *Reversibility and irreversibility in the packing of vibrated granular material*, Powder Technol. **94**, 79-83 (1997).

- [75] F. Ludewig, S. Dorbolo, T. Gilet and N. Vandewalle, *Energetic approach for the characterization of taps in granular compaction*, EPL **84**, 44001 (2008).
- [76] X. An and C. Li, *Experiments on densifying packing of equal spheres by two-dimensional vibration*, Particuology **11**, 689-694 (2013).
- [77] C. X. Li, X. Z. An, R. Y. Yang, R. P. Zou and A. B. Yu, *Experimental study on the packing of uniform spheres under three-dimensional vibration*, Powder Technol. **208**, 617-622 (2011).
- [78] O. Pouliquen, M. Nicolas and P. D. Weidman, *Crystallization of non-Brownian spheres under horizontal shaking*, Phys. Rev. Lett. **79**, 3640 (1997).
- [79] M. Nicolas, J. E. Mathonnet, B. Dalloz and P. Sornay, *Granular compaction and stretched exponentials*, In Powders and Grains 2017-the 8th International Conference on Micromechanics of Granular Media (2017).
- [80] M. Borkovec, W. De Paris and R. Peikert, *The fractal dimension of the Apollonian sphere packing*, Fractals **2**, 521-526 (1994).
- [81] C. S. Chang and Y. Deng, *A nonlinear packing model for multi-sized particle mixtures*, Powder Technol. **336**, 449-464 (2018).
- [82] R. S., Farr, *Random close packing fractions of lognormal distributions of hard spheres*, Powder Technol. **245**, 28-34 (2013).
- [83] A. B. Yu, R. P. Zou and N. Standish, *Modifying the linear packing model for predicting the porosity of nonspherical particle mixtures*, Ind. Eng. Chem. Res. **35**, 3730-3741 (1996).
- [84] R. S. Farr and R. D. Groot, *Close packing density of polydisperse hard spheres*, J. Chem. Phys. **131**, 244104 (2009).
- [85] K. W. Desmond and E. R. Weeks, *Influence of particle size distribution on random close packing of spheres*, Phys. Rev. E **90**, 022204 (2014).
- [86] C. C. Furnas, *Grading aggregates-I.-Mathematical relations for beds of broken solids of maximum density*, Ind. Eng. Chem. **23**, 1052-1058 (1931).
- [87] G. Roquier, *The 4-parameter Compressible Packing Model (CPM) including a new theory about wall effect and loosening effect for spheres*, Powder Technol. **302**, 247-253 (2016).
- [88] Gao, X., Yu, Q. L., and Brouwers, H. J. H. (2016). *Assessing the porosity and shrinkage of alkali activated slag-fly ash composites designed applying a packing model*, Constr. Build. Mater. **119**, 175-184 (2016).
- [89] S. Pillitteri, G. Lumay, E. Opsomer and N. Vandewalle, *Forced segregation in binary granular mixtures*, EPJ Web Conferences **249**, 02001 (2021).
- [90] T. J. Fiske, S. B. Raikar and D. M. Kalyon, *Effects of segregation on the packing of spherical and nonspherical particles*, Powder Technol. **81**, 57-64 (1994).
- [91] L. C. Woollacott, *The impact of size segregation on packing density in jig beds : An X-ray tomographic study*, Miner. Eng. **131**, 98-110 (2019).
- [92] K. Siliveru, C. G. Jange, J. W. Kwek and R. P. K. Ambrose, *Granular bond number model to predict the flow of fine flour powders using particle properties*, J. Food Eng. **208**, 11-18 (2017).
- [93] M. Capece, R. Ho, J. Strong and P. Gao, *Prediction of powder flow performance using a multi-component granular Bond number*, Powder Technol. **286**, 561-571 (2015).

- [94] S. Enferad, S. Pillitteri, G. Lumay, C. Gaiani, S. De Richter, M. Marck, S. Umbetov, N. Vandewalle and M. Jenny, *Powder flow behavior governed by the surface properties of glass beads*, Powder Technol. **388**, 425-433 (2021).
- [95] G. Lumay and N. Vandewalle, *Tunable random packings*, New J. Phys. **9**, 406 (2007).
- [96] G. Lumay, S. Dorbolo and N. Vandewalle, *Compaction dynamics of a magnetized powder*, Phys. Rev. E **80**, 041302 (2009).
- [97] G. Lumay and N. Vandewalle, *Experimental study of granular compaction dynamics at different scales : grain mobility, hexagonal domains, and packing fraction*, Phys. Rev. Lett. **95**, 028002 (2005).
- [98] G. Lumay and N. Vandewalle, *Experimental study of the compaction dynamics for two-dimensional anisotropic granular materials*, Phys. Rev. E **74**, 021301 (2006).
- [99] F. Ludewig, N. Vandewalle and S. Dorbolo, *Compaction of granular mixtures*, Granular Matter **8**, 87-91 (2006).
- [100] S. R. Williams, I. K. Snook and W. Van Meegen, *Molecular dynamics study of the stability of the hard sphere glass*, Phys. Rev. E **64**, 021506 (2001).
- [101] S. R. Williams, C. P. Royall and G. Bryant, *Crystallization of dense binary hard-sphere mixtures with marginal size ratio*, Phys. Rev. Lett. **100**, 225502 (2008).
- [102] I. Prasad, C. Santangelo and G. Grason, *Subjamming transition in binary sphere mixtures*, Phys. Rev. E **96**, 052905 (2017).
- [103] A. K. H. Kwan, K. W. Chan and V. Wong *A 3-parameter particle packing model incorporating the wedging effect*, Powder Technol. **237**, 172-179 (2013).
- [104] A. V. Kyrlyuk, A. Wouterse and A. P. Philipse, *Percolation and jamming in random heterogeneous materials with competing length scales*, Springer **23**, 29-33 (2010).
- [105] L. Meng, P. Lu and S. Li, *Packing properties of binary mixtures in disordered sphere systems*, Particuology **16**, 155-166 (2014).
- [106] A. P. Shapiro and R. F. Probst, *Random packings of spheres and fluidity limits of monodisperse and bidisperse suspensions*, Phys. Rev. Lett. **68**, 1422 (1992).
- [107] M. Mota, J. A. Teixeira, W. R. Bowen and A. Yelshin, *Binary spherical particle mixed beds : porosity and permeability relationship measurement*, Trans. Filtr. Soc. **1**, 101-106 (2001).
- [108] R. McGeary, *Mechanical packing of spherical particles*, J. Am. Ceram. Soc. **44**, 513-522 (1961).
- [109] I. Srivastava, S. A. Roberts, J. T. Clemmer, L. E. Silbert, J. B. Lechman and G. S. Grest *Jamming of Bidisperse Frictional Spheres*, arXiv preprint arXiv :2105.00977 (2021).
- [110] Y. Hara, H. Mizuno and A. Ikeda, *Phase transition in the binary mixture of jammed particles with large size dispersity*, Phys. Rev. Res. **3**, 023091 (2021).
- [111] N. Su, K. C. Hsu, and H. W. Chai, *A simple mix design method for self-compacting concrete*, Cem. Concr. Res. **31**, 1799-1807 (2001).
- [112] P. H. Borges, L. F. Fonseca, V. A. Nunes, T. H. Panzera and C. C. Martuscelli, *Andreasen particle packing method on the development of geopolymer concrete for civil engineering*, J. Mater. Civ. Eng. **26**, 692-697 (2014).
- [113] H. J. H. Brouwers and H. J. Radix, *Self-compacting concrete : theoretical and experimental study*, Cem. Conc. Res. **35**, 2116-2136 (2005).