



**HAL**  
open science

# L'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation de motifs

Anke Lindner

► **To cite this version:**

Anke Lindner. L'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation de motifs. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2000. Français. NNT : . tel-00000960

**HAL Id: tel-00000960**

**<https://theses.hal.science/tel-00000960>**

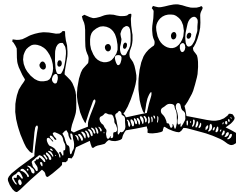
Submitted on 8 Jan 2002

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Physique des liquides



présentée par Anke LINDNER

pour obtenir le titre de Docteur de l'Université Paris VI

## L'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation de motifs

Soutenue le 8 septembre 2000 devant le jury composé de :

M. Marc RABAUD	Rapporteur
M. Henri VAN DAMME	Rapporteur
M. Alain ARNEODO	Examineur
Mme Anne-Marie CAZABAT	Examineur
M. Wim VAN SAARLOOS	Examineur
M. Daniel BONN	Directeur de thèse



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>I Généralités</b>	<b>11</b>
<b>1 L'instabilité de Saffman-Taylor</b>	<b>13</b>
1.1 La cellule de Hele-Shaw . . . . .	13
1.2 Les équations du mouvement . . . . .	14
1.3 Analyse de stabilité linéaire . . . . .	15
1.4 Évolution non-linéaire . . . . .	19
1.5 Déstabilisation des doigts . . . . .	22
1.6 Effets tridimensionnels . . . . .	22
<b>2 Les fluides non-newtoniens</b>	<b>25</b>
2.1 Rappels sur les fluides newtoniens . . . . .	25
2.1.1 La viscosité . . . . .	25
2.1.2 Le tenseur des contraintes . . . . .	26
2.2 Phénomènes d'écoulements non-newtonien . . . . .	28
2.2.1 Ecoulement dans un capillaire . . . . .	28
2.2.2 L'effet Weissenberg . . . . .	29
2.3 Caractérisation des fluides non-newtoniens . . . . .	29
2.3.1 Cisaillement simple . . . . .	31
2.3.2 Elongation simple . . . . .	36
<b>3 L'instabilité pour les fluides complexes</b>	<b>39</b>
3.1 Amincissement des doigts . . . . .	39
3.2 Elargissement des doigts . . . . .	40
3.3 Structures fractales . . . . .	40
3.4 Doigts ressemblant à des fractures . . . . .	42

3.5	Autres motifs . . . . .	46
3.5.1	Les cristaux liquides . . . . .	46
3.5.2	Mousse à raser . . . . .	46
3.6	Conclusion . . . . .	47
<b>II</b>	<b>La rhéologie</b>	<b>49</b>
<b>4</b>	<b>Techniques de mesures rhéologiques</b>	<b>51</b>
4.1	La viscosité non-newtonienne . . . . .	51
4.2	La contrainte normale . . . . .	55
4.3	Le seuil d'écoulement . . . . .	56
4.3.1	Le plan incliné . . . . .	56
4.3.2	Le rhéomètre . . . . .	57
4.4	La concentration $c^*$ . . . . .	58
4.5	Le rhéomètre utilisé . . . . .	60
<b>5</b>	<b>Caractérisation des fluides</b>	<b>63</b>
5.1	Le fluide rhéofluidifiant . . . . .	63
5.1.1	Un polymère rigide : le Xanthane . . . . .	63
5.1.2	La viscosité non-newtonienne . . . . .	64
5.1.3	La concentration $c^*$ . . . . .	65
5.1.4	La contrainte normale . . . . .	66
5.1.5	Résumé concernant les solutions de Xanthane . . . . .	68
5.2	Effets élastiques . . . . .	69
5.2.1	Un polymère flexible : le PEO . . . . .	69
5.2.2	La viscosité non-newtonienne . . . . .	69
5.2.3	La concentration $c^*$ . . . . .	69
5.2.4	La contrainte normale . . . . .	70
5.2.5	Résumé concernant les solutions de PEO . . . . .	74
5.3	Fluide à seuil . . . . .	75
5.3.1	Gel de polymères . . . . .	75
5.3.2	Le seuil d'écoulement pour le gel . . . . .	75
5.3.3	La viscosité non-newtonienne . . . . .	77
5.3.4	La contrainte normale . . . . .	78
5.3.5	La mousse . . . . .	79
5.3.6	Le seuil d'écoulement pour la mousse . . . . .	79
5.3.7	La viscosité non-newtonienne . . . . .	80

5.3.8	La contrainte normale . . . . .	80
5.3.9	Résumé pour le gel et la mousse . . . . .	81
5.4	Conclusion . . . . .	82
<b>6</b>	<b>La viscosité élongationnelle</b>	<b>83</b>
6.1	Les modèles moléculaires . . . . .	84
6.1.1	Le modèle FENE . . . . .	84
6.1.2	Le modèle Oldroyd-B . . . . .	85
6.2	Détermination de $\tau$ et $b$ . . . . .	87
6.3	La viscosité élongationnelle . . . . .	89
6.3.1	La viscosité élongationnelle déduite du modèle FENE . . . . .	89
6.3.2	Les mesures rhéologiques $\eta(\dot{\epsilon})$ . . . . .	90
6.3.3	Comparaison . . . . .	92
6.4	Le polymère PEO WSR N60K . . . . .	94
6.5	Conclusion . . . . .	96
<b>III</b>	<b>L'instabilité de Saffman-Taylor</b>	<b>99</b>
<b>7</b>	<b>La loi de Darcy pour un fluide rhéofluidifiant</b>	<b>101</b>
7.1	Le montage expérimental . . . . .	101
7.2	La loi de Darcy pour un fluide newtonien . . . . .	103
7.3	La loi de Darcy pour un fluide rhéofluidifiant . . . . .	103
7.4	Conclusion . . . . .	108
<b>8</b>	<b>Le fluide faiblement rhéofluidifiant</b>	<b>109</b>
8.1	La largeur relative en fonction de la vitesse . . . . .	109
8.2	La largeur relative en fonction de $1/B$ . . . . .	110
8.3	Prédictions théoriques . . . . .	113
8.4	Conclusion . . . . .	117
<b>9</b>	<b>Le fluide fortement rhéofluidifiant</b>	<b>119</b>
9.1	Etude expérimentale . . . . .	119
9.2	Les doigts anormaux . . . . .	120
9.3	Les fluides fortement rhéofluidifiants . . . . .	122
9.4	Saturation de $\rho/b$ . . . . .	127
9.5	Comparaison avec la théorie . . . . .	129
9.6	Limite de validité . . . . .	130

9.7	Conclusion . . . . .	132
<b>10</b>	<b>Le fluide à seuil</b>	<b>135</b>
10.1	La loi de Darcy pour un fluide à seuil . . . . .	136
10.2	La digitation visqueuse dans un fluide à seuil . . . . .	140
10.3	Le régime de seuil . . . . .	142
10.3.1	Prédictions théoriques . . . . .	143
10.3.2	Comparaison avec les résultats expérimentaux . . . . .	144
10.4	Le régime visqueux . . . . .	146
10.5	Autres fluides . . . . .	148
10.5.1	La mousse . . . . .	148
10.5.2	Le dentifrice et la crème . . . . .	149
10.6	Conclusion . . . . .	150
<b>11</b>	<b>Le fluide “élastique”</b>	<b>153</b>
11.1	La loi de Darcy pour un fluide élastique . . . . .	153
11.2	La largeur des doigts en fonction de leur vitesse . . . . .	155
11.3	Expériences avec des bulles d’air . . . . .	156
11.3.1	Bulles dans un capillaire . . . . .	156
11.3.2	Bulles dans la cellule de Hele-Shaw . . . . .	158
11.4	L’épaisseur du film . . . . .	159
11.4.1	Méthode expérimentale . . . . .	159
11.4.2	Résultats expérimentaux . . . . .	164
11.5	Le paramètre de contrôle $1/B$ . . . . .	167
11.6	Conclusion . . . . .	172
	<b>Conclusion</b>	<b>175</b>
<b>A</b>	<b>Motifs observés dans de la mousse</b>	<b>181</b>
A.1	Le montage expérimental . . . . .	181
A.2	Injection d’air dans la mousse . . . . .	182
A.3	Injection d’eau dans la mousse . . . . .	183

# Introduction

L'instabilité de Saffman-Taylor a été découverte lors de la récupération du pétrole [77]. Lors de cette récupération, on est souvent confronté à des roches poreuses, imbibées de pétrole. On essaie de chasser le pétrole des roches en le poussant avec de l'eau. Lors d'un tel processus, des pétroliers ont rapporté la formation de "doigts" d'eau dans le pétrole limitant ainsi la récupération du pétrole. En 1956, Sir G. Taylor a visité la compagnie de pétrole "Humble" où des pétroliers lui ont décrit leurs observations. A la suite de cette visite, G. Taylor a commencé à s'intéresser à cette instabilité liée au problème d'écoulement de deux phases dans un milieu poreux.

En 1958, Saffman et Taylor [76] ont mené une première étude approfondie de cette instabilité qui portera leur nom. Lors de cette étude, ils ont montré qu'un écoulement en milieu poreux peut être modélisé par un écoulement en cellule de Hele Shaw [44]. Une telle cellule consiste en un canal linéaire formé typiquement de deux plaques de verre séparées par un intervalle dont l'épaisseur  $b$  est faible devant sa largeur  $W$ . La vitesse moyenne  $V$  d'écoulement d'un fluide visqueux entre les deux plaques est liée à la pression par :  $V = -b^2/(12\eta)\nabla p$  où  $\eta$  est la viscosité du fluide. Cette relation est identique à la loi de Darcy décrivant l'écoulement dans un milieu poreux de perméabilité  $b^2/(12)$ .

Saffman et Taylor [76] ont observé que lorsqu'un fluide moins visqueux pousse un fluide plus visqueux dans une cellule de Hele-Shaw, l'interface entre les deux fluides se déstabilise et il y a formation d'un motif qu'on appelle aujourd'hui doigt de Saffman-Taylor. Ce doigt correspond aux doigts observés par les pétroliers où un fluide moins visqueux (de l'eau) pousse un fluide plus visqueux (du pétrole) dans un milieu poreux (les roches). En cellule de Hele-Shaw, ce doigt stable se propage ensuite le long de la cellule. Pour un couple de fluides et une géométrie donnés, la largeur des doigts est une fonction de leur vitesse. Cette largeur est déterminée par la compétition entre les deux forces qui agissent sur l'interface : les forces capillaires qui tendent à élargir le doigt et les forces visqueuses qui tendent à amincir le doigt. Le rapport entre ces deux forces est appelé nombre capillaire  $Ca = \Delta\eta U/\sigma$  où  $U$  est la vitesse des doigts,  $\Delta\eta$  la différence de viscosité entre les deux fluides et  $\sigma$  la tension de surface. De cette compétition résulte une



diminution de la largeur des doigts quand leur vitesse croît. A haute vitesse, la largeur des doigts tend vers une valeur telle que le doigt occupe toujours la moitié du canal [76]. L'instabilité de Saffman-Taylor est aussi appelée digitation visqueuse.

De la loi de Darcy et de l'incompressibilité des fluides ( $\nabla \cdot \mathbf{V} = 0$ ) découle :  $\Delta p = 0$ . La pression obéit à l'équation de Laplace. L'instabilité de Saffman-Taylor se place ainsi dans le cadre plus général de la croissance de motifs aux surfaces libres, comme par exemple la formation de dendrites lors d'un processus de solidification directionnelle, la propagation de flammes, l'évolution d'une colonie de bactéries où le modèle numérique d'agrégation limitée par la diffusion (DLA). Dans tous ces systèmes, la croissance du motif est gouvernée par l'équation de Laplace [71, 24].

Cette similitude avec d'autres problèmes de formation de motifs explique le grand nombre d'études théoriques et expérimentales qui ont été consacrées à cette instabilité [76, 77, 8, 45, 24, 71, 63]. Ces dernières ont conduit à une très bonne compréhension de l'instabilité pour les fluides simples. Notamment, le mécanisme de sélection qui détermine la largeur des doigts est bien compris. Le paramètre de contrôle du système,  $1/B$ , peut être exprimé en fonction du nombre capillaire et du rapport d'aspect de la cellule  $W/b$  de la façon suivante :  $1/B = Ca (W/b)^2$ . Si les valeurs de la largeur relative  $\lambda = w/W$  des doigts, où  $w$  est la largeur des doigts, pour différents fluides et différentes géométries sont représentées en fonction de ce paramètre de contrôle  $1/B$ , tous les résultats se mettent sur une courbe universelle. De plus, cette courbe universelle peut être calculée numériquement et dans certaine limites analytiquement. Ces études expliquent aussi le fait que le doigt occupe toujours la moitié du canal à vitesse élevée. Le cas des fluides simples est donc maintenant bien compris à la fois expérimentalement et théoriquement.

Récemment, l'instabilité de Saffman-Taylor a aussi été étudiée pour des fluides complexes, dits aussi non-newtoniens [63, 90]. L'intérêt d'une telle étude vient du fait que, dans la pratique (par exemple en récupération du pétrole), les fluides utilisés sont souvent des liquides qui contiennent des additifs, comme par exemple des polymères et montrent donc des propriétés d'écoulement non-newtoniens. Une grande variété de motifs remarquablement différents de ceux obtenus pour des fluides simples a été observée. Un grand nombre d'expériences ont été effectuées dans des solutions de polymères diluées où de façon surprenante, un élargissement ou un amincissement des doigts (relatif au cas newtonien) peut être observé selon les expériences. Sous certaines conditions, des doigts qui ressemblent à des fractures ont été observés. Des structures très ramifiées, fractales ont été observées dans des argiles. L'instabilité s'avère ainsi très riche en motifs pour les fluides non-newtoniens. Malheureusement, la plupart des fluides utilisés, même dans des expériences de laboratoire, possèdent plusieurs propriétés non-newtoniennes à la fois qui ne sont pas entièrement déterminées pour beaucoup d'expériences citées ci-dessus. Ceci forme un

grand obstacle pour expliquer les motifs observés. De plus, la croissance de motifs dans ces fluides n'est plus gouvernée par l'équation de Laplace pour certaines de ces propriétés non-newtoniennes, ce qui rend un traitement théorique de l'instabilité plus difficile.

Dans les expériences présentées dans cette thèse, nous nous sommes efforcés de choisir au mieux les fluides afin que chacun d'entre eux ne possède essentiellement qu'une seule propriété non-newtonienne, ce qui permet de négliger les autres. Ceci nous permet d'étudier séparément l'effet sur l'instabilité de Saffman-Taylor de ces différentes propriétés non-newtoniennes et de relier ainsi systématiquement les propriétés rhéologiques des fluides aux motifs observés en cellule de Hele-Shaw.

Cette thèse se divise en trois grandes parties. Dans la première partie de cette thèse, nous décrirons les aspects principaux de l'instabilité de Saffman Taylor pour les fluides simples (Chapitre 1), nous introduirons les principales caractéristiques des fluides non-newtoniens (Chapitre 2) et nous donnerons ensuite un résumé des observations faites dans les expériences de digitation visqueuse pour les fluides non-newtoniens jusqu'à aujourd'hui (Chapitre 3).

La deuxième partie de cette thèse est consacré à la caractérisation rhéologique des fluides utilisés. Dans le chapitre 4, nous expliquerons les principales techniques rhéologiques à l'aide desquelles nous déterminons les propriétés non-newtoniennes des fluides utilisés par la suite. Nous montrerons dans le chapitre 5, qu'effectivement chacun des fluides non-newtoniens utilisés possède une propriété non-newtonienne dominante et que les autres peuvent être négligées. on montrera que la viscosité d'une solution d'un polymère rigide (Xanthane) décroît avec le cisaillement, le fluide étant alors qualifié de rhéofluidifiant. Un gel de polymères sera caractérisé par un seuil d'écoulement qui doit être dépassé pour mettre le fluide en mouvement. Pour des contraintes supérieures à cette contrainte seuil, le gel se comporte comme un fluide rhéofluidifiant. Pour finir, des solutions d'un polymère flexible (PEO) ne montreront pas d'effet rhéofluidifiant mesurable, mais des effets élastiques, notamment des contraintes normales élevées et une viscosité élongationnelle élevée. La détermination de la viscosité élongationnelle étant délicate, nous consacrerons le chapitre 6 à sa détermination pour les solutions de PEO.

La troisième partie de cette thèse est réservée à l'étude de l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides non-newtoniens décrits dans la deuxième partie. Nous étudierons d'abord le fluide rhéofluidifiant. Dans le chapitre 7, nous déterminerons les modifications qu'il faut apporter à la loi de Darcy pour un tel fluide et discuterons leur domaine de validité. A l'aide de cette loi de Darcy modifiée, nous étudierons dans les chapitres 8 et 9 le mécanisme de sélection des doigts dans les fluides rhéofluidifiants. Nous montrerons qu'on observe pour ces fluides non-newtoniens (solutions de Xanthane) un amincissement : la largeur relative des doigts  $\lambda$  tend vers des valeurs plus petites que la limite classique

$\lambda = 0.5$  à haute vitesse. Les doigts deviennent de plus en plus fins au fur et à mesure que le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente. Nous allons modifier le paramètre de contrôle du système  $1/B$  de façon à tenir compte du caractère rhéofluidifiant des fluides. Nous montrerons dans le chapitre 8 que si les résultats expérimentaux pour la largeur relative  $\lambda$  des doigts sont tracés en fonction de ce nouveau paramètre de contrôle ils se mettent pour les fluides faiblement rhéofluidifiants (correspondant à de faibles concentrations en Xanthane) sur la courbe universelle obtenue pour les fluides newtoniens. Ceci permettra d'expliquer le mécanisme de sélection des doigts pour ces fluides faiblement rhéofluidifiants.

Pour les fluides plus fortement rhéofluidifiants (correspondant à de fortes concentrations en Xanthane) les résultats de la forme  $\lambda(1/B)$  dévient de la courbe universelle pour les fluides non-newtoniens vers des valeurs plus petites de  $\lambda$ . Dans le chapitre 9, nous comparerons nos observations faites dans les fluides fortement rhéofluidifiants avec des expériences faites par Rabaud *et al.* [73] dans les fluides newtoniens mais pour lesquels le doigt a été perturbé mécaniquement. Cette comparaison motivera une étude du rayon de courbure à la pointe des doigts qui permettra de distinguer entre deux régimes : un régime à basse vitesse où le rayon de courbure varie en fonction du nombre capillaire et un régime à haute vitesse où le rayon de courbure sature à une valeur constante. On montrera que seuls les résultats de la largeur relative des doigts  $\lambda$  provenant du régime à basse vitesse se mettent sur une courbe universelle s'ils sont tracés en fonction de  $1/B$ . Une comparaison avec des prédictions théoriques de Ben Amar et Corvera Poiré [5, 23] pour les fluides rhéofluidifiants se révèle en bon accord avec cette courbe maîtresse. Ces résultats permettront d'expliquer le mécanisme de sélection également pour les fluides fortement rhéofluidifiants.

Dans le chapitre 10, les observations expérimentales sur l'instabilité dans un fluide à seuil seront rapportées. Dans de tels fluides à seuil, on observe deux régimes différents : à basse vitesse, on observe des structures très ramifiées, tandis qu'à haute vitesse un seul doigt stable est observé. Nous montrerons que la transition entre ces deux régimes est liée à un changement du comportement rhéologique du gel. Dans le régime produisant des structures ramifiées, la contrainte seuil est dépassée de très peu et domine ainsi le comportement rhéologique du fluide. Dans le régime où on observe un seul doigt stable, des contraintes supérieures à la contrainte seuil se manifestent dans une très grande partie du système et entraînent un comportement dominant visqueux, rhéofluidifiant du gel. Nous montrerons que la largeur des doigts des structures ramifiées se révèle être indépendante de leur vitesse. Ce comportement, très différent de celui observé dans les fluides newtoniens ou rhéofluidifiants, est dû au fait que la contrainte seuil, qui gouverne l'instabilité dans ce régime, est indépendante de la vitesse. Nous montrerons de plus que cette largeur

est bien décrite par une analyse de stabilité linéaire due à Coussot [27] pour les fluides à seuil. Une comparaison entre les résultats obtenus avec le gel dans le régime à haute vitesse et les résultats obtenus avec les solutions rhéofluidifiantes de Xanthane montre des comportements similaires : la largeur des doigts décroît avec la vitesse et peut atteindre des valeurs  $\lambda < 0.5$ . Nous montrerons que ces similarités proviennent du fait que le gel présente un comportement rhéofluidifiant dans ce régime.

La chapitre 11 est réservé aux fluides qui possèdent des effets élastiques, notamment des contraintes normales et une viscosité élongationnelle élevées. L'étude de la largeur relative des doigts  $\lambda$  en fonction de leur vitesse dans les solutions de PEO révélera un élargissement des doigts :  $\lambda$  tend à vitesse élevée vers des valeurs plus élevées que la limite classique  $\lambda = 0.5$ . Ce résultat opposé à celui observé dans les solutions de Xanthane sera attribué aux effets élastiques présents dans les solutions de PEO.

Nous montrerons que la loi de Darcy newtonienne reste valable lors des expériences de digitation visqueuse dans les solutions de PEO en tenant uniquement compte de la viscosité quasiment newtonienne de ces solutions. Nous pourrions ainsi exclure une éventuelle influence de la viscosité élongationnelle sur l'instabilité. Bonn *et al.* [13] ont effectué une étude de bulles d'air de longueur finie se déplaçant dans un capillaire circulaire rempli avec des solutions de PEO. Cette situation est comparable à celle du doigt qui peut être vu comme une bulle "infinie" se déplaçant dans un capillaire rectangulaire. Les auteurs montrent un épaissement dramatique du film de liquide restant entre la bulle d'air et la paroi du capillaire par rapport à la situation où le PEO est remplacé par de l'eau. L'étude de Bonn *et al.* [13] montre que cet épaissement est dû à une contrainte normale élevée se manifestant dans le film. Cette contrainte normale est induite par un cisaillement élevé du liquide entre la surface des bulles et la paroi. La présence d'un tel cisaillement est moins évident pour un doigt de longueur "infinie" dans une cellule de Hele-Shaw, car l'arrière de doigt est immobile. Nous effectuerons donc une étude du déplacement de bulles de taille finie dans cette cellule. L'observation fondamentale est, que la largeur relative des bulles en fonction de la vitesse est identique à celle des doigts. Ceci nous montrera qu'on peut supposer un cisaillement identique au sein du film de mouillage restant entre l'air et la plaque dans les deux cas. Ceci mènera à l'hypothèse que l'épaisseur de ce film pour un doigt en cellule de Hele-Shaw pourrait être également augmentée par l'effet de la contrainte normale qui se développe dans les solutions de PEO cisillées. Ceci pourrait éventuellement conduire à l'élargissement des doigts. Notre étude interférométrique de cette épaisseur révélera cependant que l'épaisseur du film dans les solutions de PEO est quasiment inchangée par rapport à celle mesurée avec de l'eau pure dans des conditions analogues.

On montrera que la contrainte normale exerce néanmoins une pression supplémentaire,

sur le doigt. Quand le paramètre de contrôle  $1/B$  est modifié de façon à tenir compte de cette pression supplémentaire les résultats pour  $\lambda$  en fonction de ce paramètre modifié se placent sur la courbe universelle obtenue pour les fluides newtoniens à condition que les fluides utilisés ne montrent pas de effets élastiques trop élevés. Pour des contraintes normales plus élevées, on observe une déviation par rapport à cette courbe qui conduit vers des doigts plus larges.

L'ensemble de ces mesures permettra d'identifier l'effet isolé d'une viscosité rhéofluidifiante, d'un seuil d'écoulement et de la contrainte normale sur l'instabilité de Saffman-Taylor. Comme ces propriétés non-newtoniennes sont parmi les plus fréquentes, nos résultats permettront d'analyser l'instabilité aussi dans de nombreux autres fluides, présentant des combinaisons de ces propriétés non-newtoniennes. Ceci permettra éventuellement d'expliquer une partie des motifs très variés observés dans ces fluides.

# Première partie

## Généralités



# Chapitre 1

## L'instabilité de Saffman-Taylor

L'instabilité de Saffman-Taylor a pour la première fois été étudiée par Saffman et Taylor en 1958 [76] qui lui donnent son nom. Cette instabilité de Saffman-Taylor, ou digitation visqueuse, se produit quand un fluide moins visqueux pousse un fluide plus visqueux dans un canal linéaire mince ou cellule de Hele-Shaw. L'interface entre les deux fluides se déstabilise ce qui mène à la formation de doigts. A vitesse élevée, le doigt occupe toujours la moitié du canal. Le mécanisme de sélection qui mène à cette limite n'a pas été compris par Saffman et Taylor mais a été découvert beaucoup plus tard, dans les années 80 [64, 21, 80, 46]. L'instabilité de Saffman-Taylor a été beaucoup étudiée expérimentalement et théoriquement, comme on peut le voir par exemple à travers les articles de revue de Saffman *et al.* [77], Bensimon *et al.* [8], Homsy *et al.* [45], Couder [24], Pelcé [71] et de Maher *et al.* [63]. Ces études ont conduit à une très bonne compréhension de l'instabilité pour les fluides simples.

Dans ce chapitre, nous décrirons les aspects de l'instabilité de Saffman-Taylor qui seront importants pour la suite.

### 1.1 La cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw rectangulaire est constituée de deux plaques de verre séparées par un intervalle dont l'épaisseur  $b$  est petite devant la largeur  $W$  de la cellule (Fig. 1.1). Le canal ainsi formé est rempli par un fluide visqueux. Quand on pousse ce fluide avec un fluide moins visqueux, l'interface entre les deux fluides se déstabilise ce qui entraîne la formation d'un motif en forme de doigt dit doigt de Saffman-Taylor. Les paramètres importants qui caractérisent les fluides utilisés, sont la tension de surface entre les deux fluides  $\sigma$  et la différence de viscosités entre les fluides  $\Delta\eta$ .



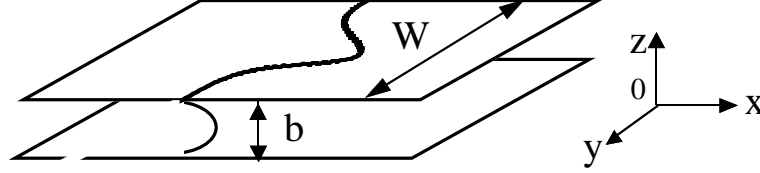


FIG. 1.1: Vue schématique d'une cellule de Hele-Shaw, constituée de deux plaques de verre dont l'intervalle  $b$  est petit devant la largeur  $W$  de la cellule. L'interface entre les deux fluides se déstabilise si un fluide moins visqueux pousse un fluide plus visqueux dans une telle cellule.

## 1.2 Les équations du mouvement

Le profil de vitesse d'un fluide en écoulement dans une cellule de Hele-Shaw se déduit de l'équation de Navier Stokes (équ. (2.7)), dans laquelle on néglige les effets inertiels. La solution est un profil de vitesse parabolique dit de Poiseuille. Si on moyenne ce profil de vitesse sur l'épaisseur  $b$  de la cellule on obtient la loi de Darcy, une loi qui relie la vitesse moyenne  $\mathbf{V}$  de l'écoulement au gradient de pression  $\nabla p$ .

$$\mathbf{V} = -\frac{b^2}{12\eta} \nabla p \quad (1.1)$$

L'obtention de cette loi sera discutée en détail dans le chapitre 7. En tenant compte de l'incompressibilité du fluide

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (1.2)$$

et de la loi de Darcy (équ. (1.1)), on déduit que le champ de pression est laplacien :

$$\Delta p = 0 \quad (1.3)$$

Cette équation est appelée équation de Laplace. Le mouvement d'un fluide en cellule de Hele-Shaw est donc gouverné par un champ de pression laplacien.

Dans le cas de l'instabilité de Saffman-Taylor, on s'intéresse au déplacement d'un fluide 1 par un fluide 2 moins visqueux dans une cellule de Hele-Shaw. Les deux fluides sont supposés non miscibles. Les viscosités des fluides 1 et 2 sont notées  $\eta_1$  et  $\eta_2$  ( $\eta_1 > \eta_2$ ). En appliquant la loi de Darcy (équ. (1.1)) au sein de chaque fluide, on se ramène à un problème à deux dimensions décrit par le système d'équations :

$$\Delta p_1 = 0 \quad (1.4)$$

$$\Delta p_2 = 0$$

où  $p_1$  et  $p_2$  désignent les pressions dans les fluides 1 et 2.

Pour obtenir une description complète du système, il faut de plus tenir compte des conditions aux limites à l'interface entre les deux fluides. Les composantes normales des vitesses des deux fluides au niveau de l'interface sont égales et définissent la vitesse  $U_n$  de l'interface :

$$U_n = -\frac{b^2}{12\eta_1} (\nabla p_1)_n = -\frac{b^2}{12\eta_2} (\nabla p_2)_n \quad (1.5)$$

où les gradients de pression sont évalués à l'interface. Cette relation est aussi appelée condition de Stefan.

La loi de Laplace impose un saut de pression  $\delta p$  à l'interface entre les deux fluides :

$$\delta p = \sigma \left( \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (1.6)$$

où  $r_1$  et  $r_2$  sont les rayons de courbure de l'interface respectivement dans la direction de l'axe  $z$ , normale à la cellule et dans le plan  $x-y$  de la cellule (Fig. 1.1). Cette condition pose un problème subtil. En effet, elle réintroduit à travers  $r_2$  la troisième dimension (celle de l'épaisseur entre les plaques) éliminée par l'approximation de Darcy. Pour la plupart des traitements de l'instabilité, on peut supposer que le ménisque a un rayon de courbure  $r_2$  constant imposé par la cellule [76] :  $r_2 = b/2$ . On trouve :

$$\delta p = \sigma \left( \frac{2}{b} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (1.7)$$

Avec cette hypothèse, le problème de Saffman-Taylor se ramène à la résolution de l'équation de Laplace pour un champ de pression bidimensionnel avec des conditions aux limites données. Bien que sa formulation soit simple, la résolution complète du problème de Saffman-Taylor est extrêmement complexe, du fait de la modification continue des conditions aux limites au fur et à mesure de la déformation de l'interface.

### 1.3 Analyse de stabilité linéaire

Considérons le déplacement d'un front plan entre de l'air et un fluide visqueux. Dans l'air, on suppose que la viscosité est nulle. De ce fait, la pression  $y$  est constante et égale à la pression appliquée  $p$ . Dans le fluide visqueux, la pression obéit à l'équation de Laplace  $\Delta p = 0$  (équ. (1.3)). Pour une interface plane parfaite, les isobares dans le fluide visqueux sont parallèles à l'interface. Si l'interface est perturbée, les isobares sont aussi perturbées. Le champ de pression étant laplacien, une perturbation de taille caractéristique  $l$  déforme

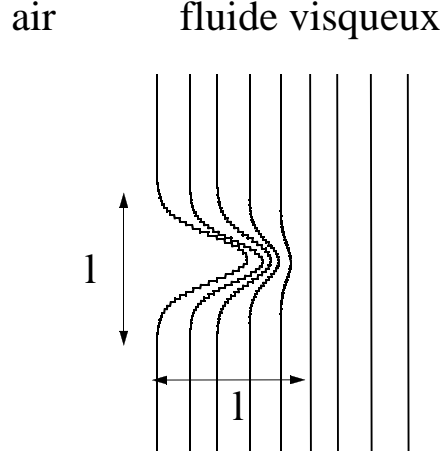


FIG. 1.2: Schéma des isobares au voisinage de l'interface entre les deux fluides. Dans l'air dont on néglige la viscosité, la pression est constante. Dans le fluide visqueux, la pression obéit à l'équation de Laplace  $\Delta p = 0$  (équ. (1.3)). Le champ de pression étant laplacien, une perturbation de l'interface de taille caractéristique  $l$  déforme les isobares sur une distance  $l$ .

les isobares sur une distance de  $l$ . Une telle perturbation est montrée sur la figure 1.2. Le gradient de pression est augmentée au voisinage de la perturbation. La loi de Darcy montre que la vitesse du fluide est aussi augmenté au voisinage de cette déformation. En conséquence, l'amplitude de la perturbation augmente et l'interface se déstabilise. La différence de viscosités entre les deux fluides est donc à travers l'équation de Laplace  $\Delta p = 0$  (équ. (1.3)) à l'origine du mécanisme d'instabilité. Le gradient de pression et la vitesse de la perturbation seront d'autant plus grands que la perturbation est pointue. Ce mécanisme favorise donc la croissance des petites perturbations. Cependant, les forces capillaires s'opposent à la formation de perturbations pointues et tendent à élargir ces protubérances. La compétition entre ces deux forces, les forces capillaires et les forces visqueuses, conduit à la sélection d'une longueur d'onde préférentielle.

La longueur d'onde caractéristique du système est déterminée par une analyse de stabilité linéaire (Chuoque *et al.* [20]). On suppose une petite perturbation sinusoïdale de l'interface initialement plane :

$$\zeta = Ut + \epsilon^{\tau t} \sin(ky) \quad (1.8)$$

où  $U$  est la vitesse de déplacement du front,  $t$  le temps,  $\epsilon$  l'amplitude de la perturbation,  $l = 2\pi/k$  sa longueur d'onde et  $\tau$  son taux de croissance. Si  $\tau$  est négatif, la perturbation

s'atténue au cours du temps et l'écoulement reste stable. Si au contraire  $\tau$  est positif, la perturbation est amplifiée et l'interface se déstabilise.

La résolution des équations du mouvement (équations (1.4)) en tenant compte des conditions aux limites (équations (1.5) et (1.7)) conduit à la relation de dispersion suivante :

$$\tau = U |k| \left[ 1 - \frac{b^2 \sigma}{12\eta U} k^2 \right] \quad (1.9)$$

Pour une tension de surface nulle, le taux de croissance est toujours positif et croît

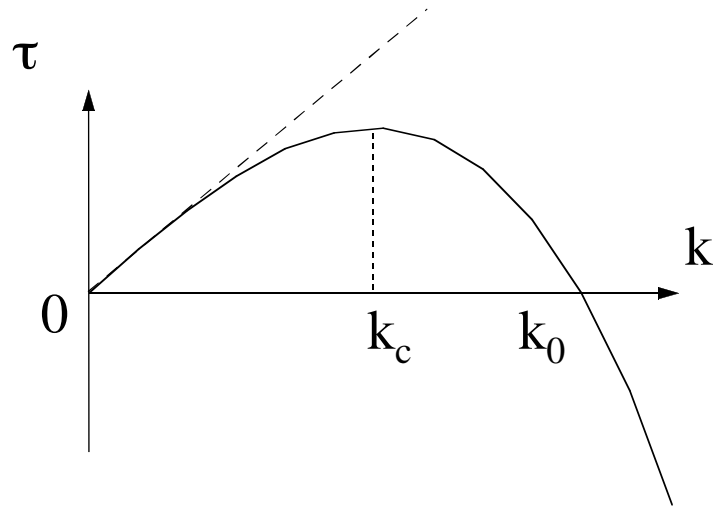


FIG. 1.3: Taux de croissance  $\tau$  d'une petite perturbation de l'interface initialement plane, se déplaçant à une vitesse donnée, en fonction du nombre d'onde  $k$  provenant de l'analyse de stabilité linéaire de Chuoke et al. [20]. (- -) représente la solution de l'équation (1.9) pour une tension de surface  $\sigma = 0$ , (-) la solution pour  $\sigma \neq 0$ .

linéairement avec le nombre d'onde  $k$  (Fig. 1.3). En accord avec l'analyse qualitative précédente, la formation des nombres d'onde larges et donc des longueurs d'onde petites est favorisée en l'absence de tension de surface. Cependant, la tension de surface s'oppose à la croissance de petits longueurs d'ondes. En considérant les effets dûs à la tension de surface, le taux de croissance (Fig. 1.3) n'est positif que pour l'intervalle des nombres d'onde compris entre 0 et  $k_0 = \sqrt{12\eta U/b^2\sigma}$  avec un maximum en  $k_c = k_0/\sqrt{3}$ . Pour une interface plane, l'écoulement est toujours instable quelle que soit la vitesse, si un fluide moins visqueux pousse un fluide plus visqueux. Dans le cas contraire qui n'est pas traité ici, l'interface est stable.

Dans la situation d'un canal de largeur finie, la longueur d'onde de la déstabilisation doit être plus petite que la largeur du canal  $W$  et donc  $2\pi/k_0 < W$ . Ceci conduit à un

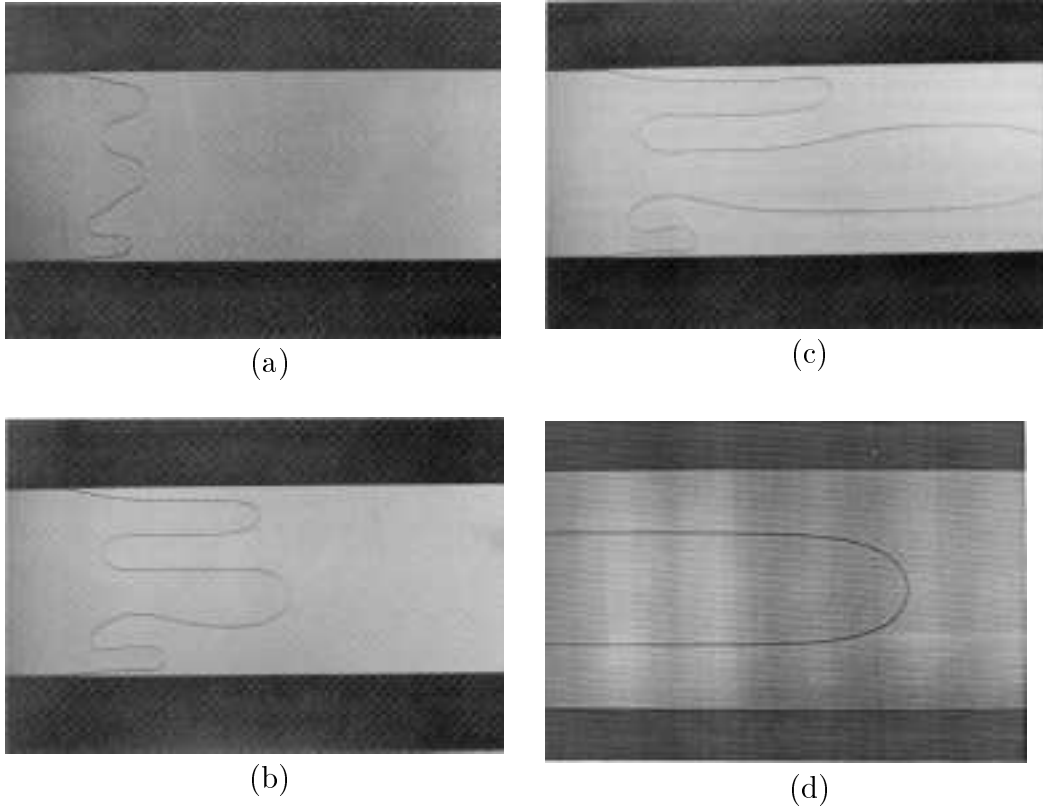


FIG. 1.4: *Evolution de l'interface entre les deux fluides en cellule de Hele-Shaw d'après [86]. Au premier stade de l'instabilité (a) des bosses de taille caractéristique  $l_c$  déforment l'interface. Rapidement la compétition entre ces bosses (b) et (c) conduit à la sélection d'un seul doigt. Ce doigt est caractérisé par sa largeur relative  $\lambda$  en fonction de sa vitesse  $U$  (d).*

seuil d'instabilité qui est donné par :

$$\left(\frac{W}{b}\right)^2 \frac{\eta U}{\sigma} > (2\pi)^2 \quad (1.10)$$

La longueur d'onde la plus instable qu'on appelle aussi longueur capillaire est donnée par :

$$l_c = \frac{2\pi}{k_c} = \pi b \sqrt{\frac{\sigma}{\eta U}} \quad (1.11)$$

et elle définit l'échelle de longueur caractéristique du problème. Dans l'équation (1.11), on reconnaît encore une fois la compétition entre les forces capillaires qui tendent à augmenter la longueur capillaire et les forces visqueuses qui tendent à diminuer la longueur capillaire. Le rapport entre ces deux forces est appelé nombre capillaire  $Ca$  :

$$Ca = \frac{\text{forces visqueuses}}{\text{forces capillaires}} = \frac{\eta U}{\sigma} \quad (1.12)$$

La longueur capillaire peut ainsi s'écrire de la façon suivante :

$$l_c = \frac{\pi b}{\sqrt{Ca}}. \quad (1.13)$$

## 1.4 Évolution non-linéaire

L'analyse de stabilité linéaire permet de prédire la taille caractéristique  $l_c$  des premiers doigts qui déforment l'interface, au tout début de l'instabilité. La déstabilisation de l'interface pour une vitesse choisie est montrée sur la figure 1.4 a. L'évolution ultérieure de l'interface n'est pas décrite par l'analyse linéaire. Expérimentalement, on constate qu'il

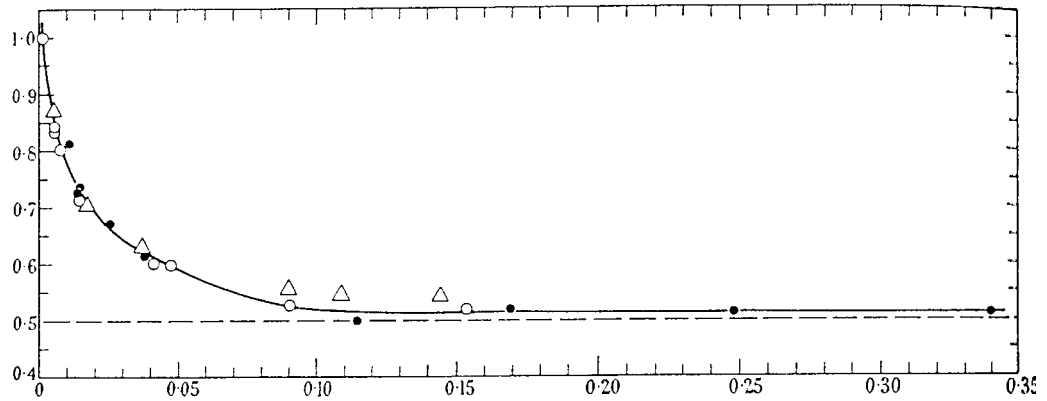


FIG. 1.5: *Largeur relative des doigts  $\lambda$  obtenues pour différents fluides dans une seule géométrie de cellule de Hele-Shaw en fonction du nombre capillaire  $Ca$  d'après les expériences de Saffman et Taylor [76].*

y a une compétition entre les différents doigts (Fig. 1.4 b et c). En raison du caractère Laplacien du champ de pression, les doigts les plus grands écrantent les doigts les plus petits. Cette compétition se poursuit jusqu'à ce qu'il ne reste qu'un seul doigt stable qui continue à se propager dans la cellule (Fig. 1.4 d). Ce doigt se caractérise par sa largeur relative  $\lambda = w/W$ , où  $w$  est la largeur du doigt et  $W$  la largeur de la cellule, qui est une fonction de sa vitesse  $U$ . On montre [76] que le paramètre de contrôle du système est le suivant :

$$\frac{1}{B} = 12 \frac{\eta U}{\gamma} \left( \frac{W}{b} \right)^2 \propto \left( \frac{W}{l_c} \right)^2 \quad (1.14)$$

Notons que ce paramètre mesure l'écart entre la petite échelle de longueur du problème  $l_c$  (la longueur de déstabilisation) et la grande échelle de longueur  $W$  (imposée par la largeur de la cellule de Hele-Shaw). Il décrit donc l'importance du confinement de l'interface.

Si les valeurs de  $\lambda$  pour différents géométries ou différents fluides sont représentés en fonction de  $1/B$ , ils suivent une courbe maîtresse. Les résultats de mesures de  $\lambda$  obtenus par Saffman-Taylor pour différents fluides et une seule géométrie du canal sont représentés en fonction de  $Ca$  sur la figure 1.5. Pour des vitesses faibles, donc des  $Ca$  petits, les forces capillaires dominent. On trouve des doigts larges. Quand la vitesse augmente, les forces visqueuses deviennent de plus en plus importantes et la largeur des doigts diminue. On s'attendrait donc à une largeur extrêmement petite pour des vitesses élevées. On observe cependant qu'à vitesse élevée la largeur relative des doigts se stabilise sur un plateau à

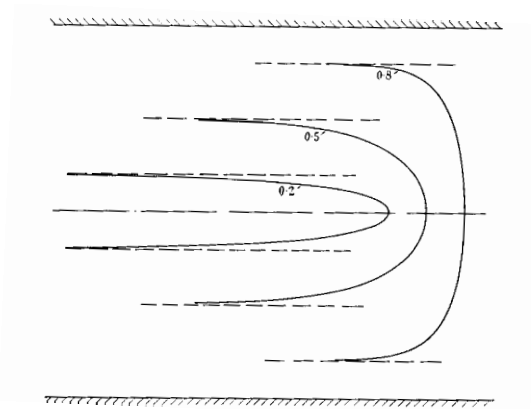


FIG. 1.6: Profil des doigts calculé pour une tension de surface nulle d'après l'équation (1.15) de l'analyse de Saffman et Taylor [76]. Ce profil est en bon accord avec les observations expérimentales pour des valeurs de  $\lambda$  proche de 0.5. Pour des doigts plus larges, correspondant à des vitesses plus faibles, la tension de surface ne peut pas être négligée et les résultats expérimentaux dévient du profil calculé.

$\lambda = 0.5$  : le doigt occupe toujours la moitié du canal. Cette limite de  $\lambda = 0.5$  est restée inexplicée pendant très longtemps.

Les premières analyses de l'instabilité ont été menées par Saffman et Taylor en 1958 [76] qui ont négligé la tension de surface. En utilisant une transformation conforme, ils ont calculé la forme des doigts. Ce faisant, ils trouvent une famille continue de solutions analytiques paramétrisées par  $\lambda$  ( $0 < \lambda < 1$ ) :

$$x = \frac{1 - \lambda}{\pi} \ln \frac{1}{2} \left( 1 + \cos \frac{\pi y}{\lambda} \right) \quad (1.15)$$

où  $x$  et  $y$  sont les coordonnées des points de l'interface exprimées dans le référentiel de l'extrémité du doigt en unités de la largeur de la cellule. Pour des doigts de largeur relative proche de 0.5, l'accord avec les résultats expérimentaux est très bon. Pour les doigts plus larges, correspondant à des vitesses plus faibles, la tension de surface ne peut plus être

négligée et l'équation (1.15) n'est plus vérifiée. Quelques solutions de l'équation (1.15) sont représentées sur la figure 1.6. Bien que l'équation (1.15) prédise correctement la forme des doigts pour  $\lambda$  proche de 0.5, elle n'explique pas pourquoi cette valeur en particulier est sélectionnée.

Les études de sélection et de stabilité du doigt de Saffman Taylor prenant en compte la tension de surface ont d'abord été numériques. En 1980, McLean et Saffman ont calculé numériquement la dépendance de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  et ont pu reproduire la limite 0.5 pour des  $1/B$  élevés. Ce résultat montre que la sélection des doigts est induite par la tension de surface.

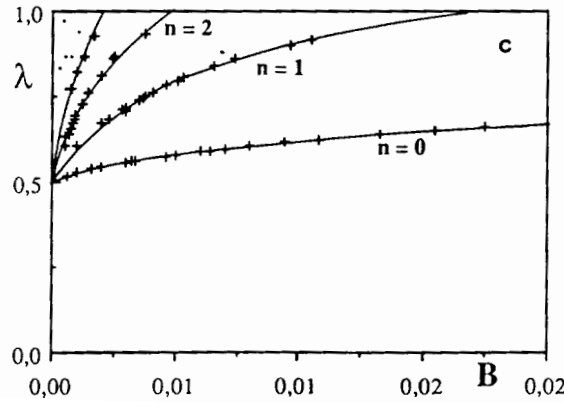


FIG. 1.7: Résultats pour de largeur relative  $\lambda_n$  en fonction de  $B$  de la famille discrète sélectionnée par la tension de surface pour  $n = 0, 1$  et  $2$  d'après [24]. La solution pour  $n = 0$  est stable et correspond au doigt qui est observé expérimentalement.

Ce n'est seulement en 1986 que trois groupes : Combescot *et al.* [21], Hong et Langer [46] et Shraiman [80] effectuent simultanément une démonstration analytique de la sélection de la largeur du doigt de Saffman Taylor. Leur travaux montrent que la tension de surface représente une perturbation singulière du problème et introduit ainsi (bien que les forces capillaires soient très faible devant les forces visqueuses à vitesse élevée) une condition supplémentaire à la pointe des doigts. Pour une valeur de  $1/B$  donnée, seule une famille de solutions discrètes  $\lambda_n$  provenant du continuum de Saffman et Taylor vérifie cette condition. Les solutions pour  $\lambda_n$  en fonction de  $(1/B)$  de cette famille discrète tendent toutes vers 0.5 lorsque  $1/B$  devient grand. Dans cette limite de  $1/B$  grand,  $\lambda_n$  en fonction de  $1/B$  découle de la formule analytique suivante [24] :

$$\left(\lambda_n - \frac{1}{2}\right) = \frac{(16\pi^2)^{2/3}}{8} a_n (1/B)^{-2/3} \quad (1.16)$$

où les coefficients  $a_n$  sont donnés de façon approximative par  $a_n = 2(n + 4/7)^2$ . Cette



dépendance est aussi reproduite numériquement [24]. Les résultats ainsi obtenus pour  $n = 0, 1$  et  $2$  sont montrés sur la figure 1.7. L'étude de la stabilité des différentes branches montre que seule la plus étroite ( $n=0$ ) est linéairement stable pour toutes les valeurs de  $1/B$ . C'est cette branche qui est observée expérimentalement. Le mécanisme de sélection des doigts de Saffman-Taylor a donc finalement été compris.

## 1.5 Déstabilisation des doigts

Dans le paragraphe précédent, nous avons décrit la dépendance de la largeur d'un doigt stable en fonction de sa vitesse. Nous avons montré que le mécanisme de sélection des doigts est maintenant bien compris. Mais on observe expérimentalement que ce doigt se déstabilise quand  $1/B$  devient suffisamment grand. L'extrémité du doigt se scinde répétitivement en deux ("tip-splitting") : il y a formation d'une structure branchée. Un exemple de ce processus est montré sur la figure 1.8. La valeur de  $1/B$  du seuil de cette instabilité secondaire varie fortement avec le niveau de bruit dans la cellule. Ainsi on observe une fluctuation énorme de cette valeur d'une expérience à l'autre. Park et Homsy observent une déstabilisation du doigt vers  $1/B = 5000$  [66]. Tabeling *et al.* [86] en réduisant le bruit dans leurs expériences augmentent le seuil jusqu'à  $1/B \sim 60000$ .

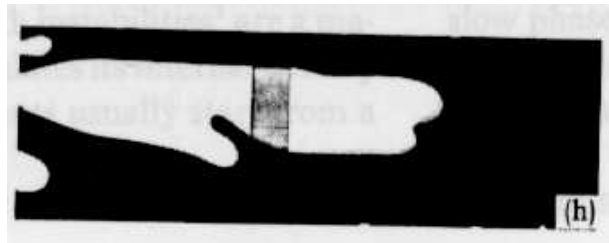


FIG. 1.8: *Déstabilisation d'un doigt à vitesse élevée par "tip-splitting" d'après Park et Homsy [66]*

## 1.6 Effets tridimensionnels

Jusqu'à maintenant, nous avons discuté le traitement bidimensionnel de l'instabilité de Saffman-Taylor. Les analyses classiques comme celles de Saffman et Taylor [76] et de McLean et Saffman [64] sont faites dans le cadre de cette approximation.

En pratique, le problème est plus complexe : l'interface entre l'air et le fluide se déplace dans un espace à trois dimensions. Quand le ménisque à la pointe du doigt avance dans la cellule de Hele-Shaw, il laisse derrière lui un film de mouillage sur les plaques (Fig.

1.9 a). Ce film a jusqu'ici été négligé. Dans le cas d'un fluide qui mouille la surface, une

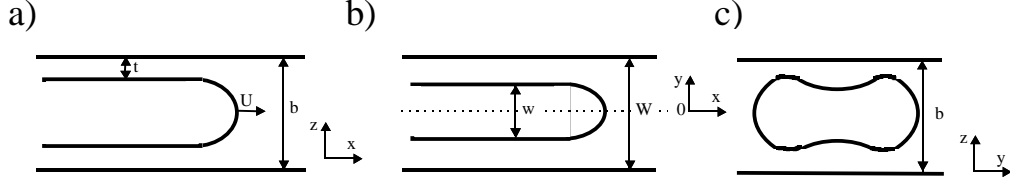


FIG. 1.9: Vue schématique du doigt et du film de mouillage entre le doigt et les plaques de verre. (a) Vue du doigt de côté.  $t$  est l'épaisseur de film de mouillage. (c) Vue du dessus du doigt. (c) Forme schématisée de la forme du film de mouillage le long de la largeur de la cellule.

étude théorique du film de drainage laissé derrière des bulles d'air dans un capillaire a été menée par Bretherton [16]. Il montre que dans la limite des faibles nombres capillaires  $Ca = \eta U / \sigma$ , l'épaisseur du film  $t$  est proportionnelle à  $Ca$  à la puissance  $2/3$  :

$$\frac{t}{R} = 0.643 (3 Ca)^{2/3} \quad (1.17)$$

où  $R$  est le rayon du capillaire. Park et Homsy [67] ont vérifié que cette loi peut être appliquée au cas d'un doigt de Saffman-Taylor dans une cellule de Hele-Shaw. Pour cela,  $R$  est remplacé par l'épaisseur de la cellule  $b$  et le nombre capillaire  $Ca = \frac{\eta U}{\sigma}$  est évaluée à  $U = U_n$  où  $U_n$  est la composante de la vitesse normale à l'interface. Le film de mouillage induit une modification du saut de pression à l'interface. Ce saut de pression a été déterminé par Park et Homsy [67] :

$$\delta p = \frac{\sigma}{b/2} [1 + 3.8 Ca^{2/3}] + \frac{\pi}{4} \sigma \kappa \quad (1.18)$$

Dans la limite  $Ca \rightarrow 0$  où l'épaisseur du film tend vers zéro, on retrouve un saut de pression  $\delta p$  de la forme de l'équation (1.7) utilisée pour le traitement bidimensionnel.

Une étude expérimentale de l'épaisseur du film de mouillage par interférométrie a été menée par Tabeling *et al.* [86, 87]. Pour un doigt de Saffman-Taylor, la vitesse normale  $U_n$  varie le long de l'interface courbée et induit ainsi une variation de l'épaisseur du film. Tabeling *et al.* [86, 87] ont montré qu'en effet l'épaisseur de ce film est bien décrite par une loi de la forme suivante :

$$t = t_{\max} \left( \frac{U_n}{U} \right)^{2/3} \quad (1.19)$$

Le film obéit donc à une loi de Bretherton locale le long de l'interface du doigt.  $U_n$  est maximale à la pointe du doigt ce qui entraîne une largeur maximale du film au milieu du

doigt selon l'axe ( $Ox$ ) (Fig. 1.9 b). La forme de ce film est schématisée sur la figure 1.9 c. L'évolution de l'épaisseur maximale  $t_{\max}$  avec  $Ca$  est bien décrite par la loi de Bretherton pour  $Ca < 3 \cdot 10^{-3}$ .

Outre cela, ce film exerce une influence sur la largeur des doigts. Il en découle que les valeurs de  $\lambda$  pour différentes géométries et différents fluides dévient faiblement de la prédiction théorique de McLean et Saffman [64]  $\lambda(1/B)$  [86]. De plus, les différents résultats expérimentaux ne tombent pas précisément sur une seule courbe maîtresse. L'accord entre les résultats expérimentaux et la prédiction théorique peut être amélioré si on tient compte du film de mouillage. Pour cela, Tabeling *et al.* [86] utilisent une tension de surface effective  $\sigma^*$  qui découle du saut de pression à l'interface tenant compte du film de mouillage (équ.(1.18)). L'épaisseur de ce film de mouillage est moyenné le long de la largeur du doigt et on obtient :

$$\sigma^* = \sigma \left[ \frac{\pi}{4} + \alpha \left( \frac{\lambda W}{b} \right) Ca^{2/3} \right] \quad (1.20)$$

Le fait de moyenner sur l'épaisseur du film fait intervenir le paramètre  $\alpha$  déterminé expérimentalement,  $\alpha = 1.7$ .  $1/B$  peut ensuite être recalculé avec cette tension effective de surface :

$$\frac{1}{B^*} = 12 \left( \frac{\eta U}{\sigma^*} \right) \left( \frac{W}{b} \right)^2 \quad (1.21)$$

Si les résultats expérimentaux sont tracés en fonction de ce paramètre  $1/B^*$  ils sont en bon accord avec la prédiction théorique de McLean et Saffman dans la domaine de validité de la loi de Bretherton (équ. (1.17)) ( $Ca < 3 \cdot 10^{-3}$ ).

Pour des nombres capillaires supérieur à  $Ca \sim 10^{-2}$  les résultats obtenus pour  $t_{\max}$  devient de la prédiction de la loi de Bretherton et tendent vers une valeur de saturation pour des  $Ca$  larges [86]. Dans ce domaine, on observe que la largeur relative des doigts  $\lambda$  passe en dessous de la limite  $\lambda = 0.5$  prédite par les théories classiques bidimensionnelles [64, 21, 80, 46]. L'écart entre les valeurs de  $\lambda$  observées et  $\lambda = 0.5$  reste faible. L'amincissement du doigt est très probablement induit par le film de mouillage.

En conclusion, nous avons montré que l'instabilité de Saffman-Taylor est modifiée si les effets tridimensionnels deviennent importants. Un traitement bidimensionnel de l'instabilité est cependant possible dans la limite des petits nombres capillaires où les effets tridimensionnels sont faibles.

# Chapitre 2

## Les fluides non-newtoniens

Dans ce chapitre, nous présenterons les propriétés les plus importantes des fluides non-newtoniens. Dans le premier paragraphe, nous rappellerons les caractéristiques des fluides newtoniens. Des fluides qui se comportent comme des fluides newtoniens lors d'écoulements rhéologiques standards sont par exemple l'eau et les huiles. En revanche, les solutions de polymères se comportent typiquement comme des fluides non-newtoniens. Dans le deuxième paragraphe, nous présentons quelques phénomènes observés lors de l'écoulement de fluides non-newtoniens, qui montrent un comportement très différent de celui des fluides newtoniens. Dans le dernier paragraphe, nous décrirons les caractéristiques principales des fluides non-newtoniens.

De nombreux livres traitent de l'hydrodynamique dans le cas newtonien, par exemple les livres de Guyon *et al.* [39] et de Landau et Lifschitz [52]. Des informations sur les fluides non-newtoniens peuvent être trouvées par exemple dans les livres de Bird *et al.* [9], de Barnes *et al.* [3] et de Coussot *et al.* [28].

### 2.1 Rappels sur les fluides newtoniens

#### 2.1.1 La viscosité

La propriété la plus importante et la plus connue en rhéologie est sans doute la viscosité. La première étude sur la viscosité a été menée par Isaac Newton en 1687 et est publiée dans *Principia*. Newton considère un écoulement de cisaillement simple comme il est représenté sur la figure 2.1. Un fluide est confiné entre deux plaques de surface  $A$  qui se trouvent à une distance  $b$  l'une de l'autre. Le fluide est mis en mouvement par une force  $\mathbf{F}$  appliquée sur la plaque supérieure. La force par unité de surface nécessaire pour tirer la plaque à une vitesse  $\mathbf{V}$  est la contrainte  $\boldsymbol{\pi} = \mathbf{F}/A$ . Elle est proportionnelle

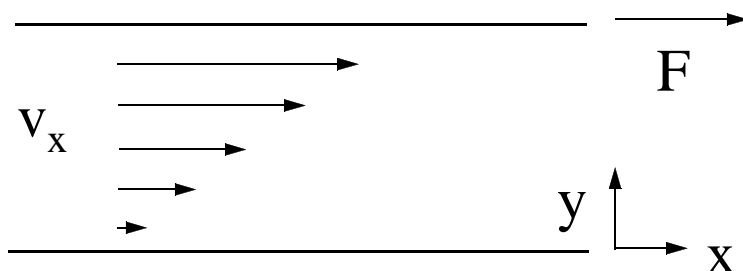


FIG. 2.1: *Écoulement de cisaillement simple : un fluide est confiné entre deux plaques qui se trouvent à une distance  $b$  l'une de l'autre et dont la plaque supérieure est en mouvement à vitesse constante  $V$ . Le cisaillement  $\dot{\gamma}$  entre les deux plaques correspond à  $\dot{\gamma} = \partial v_x / \partial y = V/b$ .*

au gradient de vitesse dans la direction normale aux plaques :  $\dot{\gamma} \equiv \partial v_x / \partial y = V/b$  qu'on appelle aussi cisaillement. Si on double la force  $\mathbf{F}$ , on double la vitesse  $\mathbf{V}$ . Le coefficient de proportionnalité reliant le gradient à la contrainte est appelé viscosité  $\eta$ , ce qui permet d'écrire la loi de Newton :

$$\eta \equiv \frac{\pi}{\dot{\gamma}} \quad (2.1)$$

Elle est aujourd'hui expérimentalement bien établie pour les liquides dit newtoniens.

### 2.1.2 Le tenseur des contraintes

La généralisation de cette relation entre la contrainte et les vitesses de déformation (équation (2.1)) à des écoulements et des fluides arbitraires se fait à l'aide des tenseurs des contraintes  $\boldsymbol{\pi}$  et des taux de déformations  $\mathbf{D}$ .

Considérons un élément de surface  $dS$  de normale  $\mathbf{n}$  dans un fluide. On analyse la force exercée par la fraction de volume située d'un côté de l'élément sur celle située de l'autre côté. Pour préciser cette force, il est nécessaire de connaître les trois composantes de la contrainte suivant les axes  $x, y, z$  pour trois orientations de surface unité perpendiculaire à ces axes (Fig. 2.2 a). Cela conduit au tenseur des contraintes  $\boldsymbol{\pi}$  dans le fluide considéré. L'élément  $\pi_{ij}$  du tenseur représente la composante suivant  $i$  de la contrainte exercée sur une surface dont la normale est orienté suivant  $j$ . Ainsi  $\pi_{yx}$ ,  $\pi_{zx}$  et  $\pi_{xx}$  sont les composantes suivant  $Oy$ ,  $Oz$  et  $Ox$  de la contrainte exercée sur une surface dont  $\mathbf{n}$  est orientée selon  $Ox$  (Fig. 2.2 a).  $\pi_{yx}$  est une contrainte tangentielle ou de cisaillement et  $\pi_{xx}$  est une contrainte normale. Dans la littérature, une composante  $\pi_{xx}$  positive (et de même pour  $\pi_{yy}$  et  $\pi_{zz}$ ) est généralement définie comme une tension. Nous allons adopter cette définition pour la suite. Notons que Bird *et al.* [9] définissent  $-\pi_{xx}$  comme une tension, ce qui entraîne des signes contraires dans leur formules par rapport à celles présentées ici. La force exercée

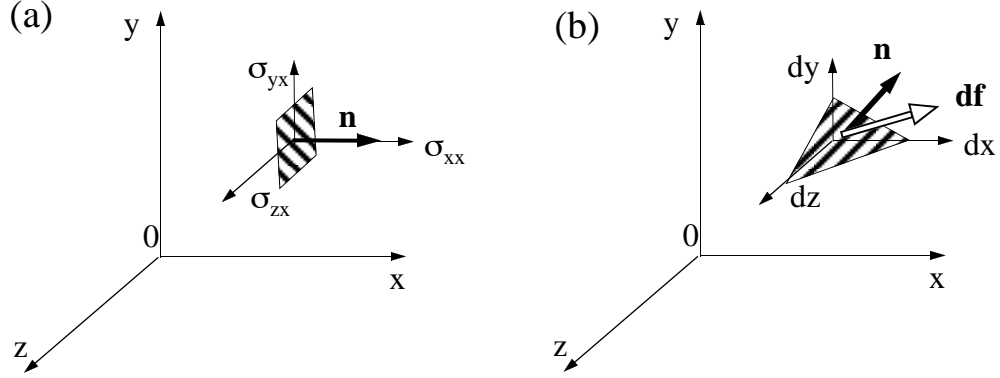


FIG. 2.2: a) Composantes  $\pi_{xx}$ ,  $\pi_{yx}$  et  $\pi_{zx}$  de la contrainte exercée sur une surface dont la normale est orientée suivant  $Ox$ . b) Détermination de la force de contrainte  $d\mathbf{f}$  sur une surface d'aire  $dS$  dont la normale  $\mathbf{n}$  est d'orientation quelconque.

sur une surface de normale  $\mathbf{n}$  quelconque s'écrit maintenant :

$$\frac{d\mathbf{F}}{dS} = \boldsymbol{\pi}_n = \boldsymbol{\pi}\mathbf{n} \quad (2.2)$$

On peut extraire du tenseur des contraintes la partie qui correspond aux contraintes de pression, qui sont les seules présentes en l'absence de gradient de vitesse. On décompose le tenseur sous la forme :

$$\boldsymbol{\pi} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} \quad (2.3)$$

où  $\boldsymbol{\tau}$  est le tenseur des contraintes visqueuses, que nous appellerons par la suite tenseur des contraintes.

Pour pouvoir résoudre les problèmes d'écoulements dans un fluide particulier, il faut connaître la relation entre le tenseur des contraintes et les déformations dans le fluide. Les déformations dans un fluide sont données par le tenseur des gradients de vitesse :  $G_{ij} = \frac{\partial V_i}{\partial x_j}$ . Ce tenseur peut être décomposé en une partie symétrique et une partie antisymétrique. La partie antisymétrique traduit la rotation en bloc du fluide. Ce type de mouvement ne donne pas lieu à des interactions entre éléments voisins et n'est donc pas lié aux contraintes au sein du fluide. On s'intéresse donc au tenseur des taux de déformation  $\mathbf{D}$ , la partie symétrique de  $\mathbf{G}$  qui est :

$$D_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial V_i}{\partial x_j} + \frac{\partial V_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.4)$$

Notons que lorsque le fluide est incompressible, on a d'après l'équation de la conservation de la masse (1.2)  $\text{tr}\mathbf{D} = \nabla \cdot \mathbf{V} = 0$ . Une équation qui relie  $\boldsymbol{\tau}$  et  $\mathbf{D}$  pour des écoulements arbitraires est appelée équation constitutive.

Pour un fluide newtonien, incompressible, cette équation est :

$$\boldsymbol{\tau} = 2\eta\mathbf{D} \quad (2.5)$$

L'équation constitutive pour les fluides newtoniens incompressibles contient une seule constante : la viscosité  $\eta$ . En sachant que l'équation du mouvement pour des fluides quelconques s'écrit [39] :

$$\rho \frac{d\mathbf{V}}{dt} = \rho\mathbf{f} - \nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} \quad (2.6)$$

où  $d\mathbf{V}/dt = \partial\mathbf{V}/\partial t + (\mathbf{V} \cdot \mathbf{grad})\mathbf{V}$  et  $\mathbf{f}$  la force extérieure, on voit que si la relation entre  $\boldsymbol{\tau}$  et  $\mathbf{D}$  est connue le problème d'écoulement est bien défini. De l'équation constitutive des fluides newtoniens (2.5) et de l'équation (2.6) suit l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{d\mathbf{V}}{dt} = \rho\mathbf{f} - \nabla p + \eta\Delta\mathbf{V} \quad (2.7)$$

## 2.2 Phénomènes d'écoulements non-newtonien

Le but de ce paragraphe est de montrer les énormes différences de comportement entre les fluides non-newtoniens et les fluides newtoniens. Pour cela, nous présentons quelques exemples d'écoulements non-newtoniens notamment dans des solutions de polymères. Il est important de noter que les exemples choisis ne représentent pas des comportements exceptionnels de quelques fluides mais sont plutôt typiques de solutions qui contiennent des macromolécules.

### 2.2.1 Ecoulement dans un capillaire

Cette première expérience montre un exemple de comportement d'un fluide dont la viscosité est non-newtonienne. Deux capillaires sont remplis respectivement avec un fluide newtonien et une solution de polymères. Les fluides sont choisis de façon à avoir la même viscosité à bas cisaillement : ceci est vérifié en suivant le mouvement d'une très petite bille qui tombe lentement mais à la même vitesse dans chacun des deux fluides (Fig. 2.3). Si les fluides étaient newtoniens, cela voudrait dire que les deux capillaires devraient donc se vider à la même vitesse lorsqu'on les ouvre. Dans l'expérience, par contre, on constate que le capillaire rempli avec le fluide non-newtonien (solution de polymères) se vide plus rapidement que celui rempli avec le fluide newtonien. Ce phénomène s'explique par le fait que la viscosité de la solution de polymères dépend du cisaillement et décroît avec celui-ci. On reviendra sur ce phénomène au paragraphe 2.3.1.

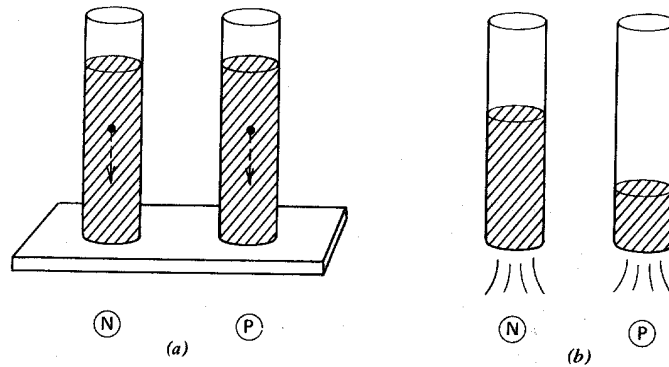


FIG. 2.3: *Écoulements dans un capillaire. Le comportement newtonien (N) est montré à gauche et le comportement non-newtonien (P) à droite. a) les deux billes tombent à la même vitesse ; b) la solution de polymères s'écoule plus rapidement du capillaire que le fluide newtonien [9].*

### 2.2.2 L'effet Weissenberg

Cette expérience met en jeu les effets élastiques du fluide utilisé. Un bâton tournant est introduit dans deux récipients remplis respectivement avec un fluide newtonien et une solution de polymères. Le fluide newtonien est repoussé vers les bords du récipient à cause de la force centrifuge et un creux à la surface du liquide se forme autour du bâton. Le comportement de la solution de polymères est très différent. Au lieu de se creuser, la surface monte le long du bâton (voir fig. 2.4). Ce phénomène est appelé effet Weissenberg [9]. L'effet est expliqué par l'existence de contraintes normales élevées. La contrainte normale sera discutée en détail dans le paragraphe 2.3.1. La répartition de cette contrainte normale, le long des lignes de courant, est similaire à celle que l'on aurait si une bande élastique entourait le bâton, et dont la tension créerait une remontée de fluide le long de l'axe.

Notons qu'on peut aussi observer ce phénomène quand le blanc d'oeuf remonte le long de l'axe d'un batteur rotatif.

## 2.3 Caractérisation des fluides non-newtoniens

Dans le premier paragraphe, nous avons vu que les contraintes dans un fluide newtonien peuvent être caractérisées par une seule constante : la viscosité  $\eta$ . Une fois que cette quantité a été mesurée, la réponse du fluide pour des écoulements arbitraires est fixée à l'aide de l'équation constitutive (2.5).

Les exemples du paragraphe précédent ont montré que la situation pour les fluides non-newtoniens est fondamentalement différente et que la loi de Newton pour la viscosité n'est





FIG. 2.4: *Récipient fixe avec bâton tournant. La solution de polyacrylamide monte le long du bâton [9].*

pas adaptée pour décrire les fluides non-newtoniens. Contrairement au cas newtonien, une équation constitutive n'est connue que pour très peu de fluides non-newtoniens.

Pour la plupart des fluides, il n'est pas possible de trouver une équation constitutive, c'est à dire de trouver une relation entre  $\mathbf{D}$  et  $\boldsymbol{\tau}$  pour des écoulements arbitraires. On se contente donc de déterminer cette relation pour quelques écoulements particuliers.

Nous allons présenter dans ce paragraphe les écoulements standards, extrêmement simples et bien définis, utilisés pour caractériser les fluides non-newtoniens et discuter les grandeurs qui peuvent être déduites de chacun de ces écoulements. Notons que dans la plupart des cas ces paramètres, contrairement au cas newtonien, ne sont pas des constantes, mais des fonctions qui dépendent des caractéristiques de l'écoulement telles que le cisaillement. Nous présenterons aussi les comportements typiques de ces grandeurs. Nous nous limiterons ici aux écoulements de cisaillement et d'élongation simples qui seront importants pour la suite.

On peut distinguer deux effets non-newtoniens principaux : les effets de viscosité et les effets élastiques. Les effets de viscosité interviennent en cisaillement simple. Les effets élastiques se manifestent lors d'élongations de volumes de fluides. Cependant, comme tout mouvement de cisaillement peut se décomposer en une rotation pure et une élongation, les effets élastiques interviennent dans les écoulements élongationnels ainsi que dans les écoulements de cisaillement simple. Les effets élastiques se manifestent notamment par des contraintes normales non nulles et une viscosité élongationnelle élevée.

### 2.3.1 Cisaillement simple

#### Le tenseur des contraintes

Nous considérons d'abord un écoulement de cisaillement simple comme nous l'avons déjà décrit dans le paragraphe 2.1.1 et dont le champ de vitesse est donné par :

$$\begin{aligned}v_x &= \dot{\gamma}y \\v_y &= 0 \\v_z &= 0\end{aligned}\tag{2.8}$$

Le tenseur des déformations s'exprime de la manière suivante :

$$D = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} 0 & 1/2 & 0 \\ 1/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}\tag{2.9}$$

Dans le cas d'un fluide newtonien, seule la composante  $\tau_{xy}$  du tenseur des contraintes est non nulle et l'équation (2.5) donne :

$$\boldsymbol{\pi} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} = \begin{pmatrix} -p & \eta\dot{\gamma} & 0 \\ \eta\dot{\gamma} & -p & 0 \\ 0 & 0 & -p \end{pmatrix}\tag{2.10}$$

Pour les fluides non-newtoniens, il faut, en l'absence d'une équation constitutive, supposer que les 6 composantes du tenseur des contraintes peuvent être non nulles. On peut cependant montrer par des raisons de symétrie que la forme la plus générale du tenseur des contraintes en cisaillement simple est :

$$\boldsymbol{\pi} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} = \begin{pmatrix} -p + \tau_{xx} & \tau_{xy} & 0 \\ \tau_{xy} & -p + \tau_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & -p + \tau_{zz} \end{pmatrix}.\tag{2.11}$$

Les trois quantités expérimentalement accessibles en cisaillement simple sont :

la contrainte de cisaillement	$\tau_{yx}$
la première différence de contraintes normales	$\tau_{xx} - \tau_{yy}$
la deuxième différence de contraintes normales	$\tau_{yy} - \tau_{zz}$

Dans la suite, nous allons discuter de ces termes en détail.

#### La viscosité non-newtonienne

Pour un fluide newtonien, on reconnaît dans le tenseur des contraintes (2.10) la définition de la viscosité de Newton (équation (2.1)), qui est constante :

$$\eta \equiv \frac{\tau_{xy}}{\dot{\gamma}}\tag{2.12}$$

La viscosité non-newtonienne est définie de la même façon :

$$\eta(\dot{\gamma}) \equiv \frac{\tau_{xy}}{\dot{\gamma}} \quad (2.13)$$

mais, contrairement à la viscosité newtonienne, elle dépend du cisaillement. On l'appelle aussi viscosité de cisaillement ou viscosité apparente. L'origine de cette qualification deviendra plus clair dans le paragraphe 4.1. Dans la plupart des cas, la viscosité décroît avec le cisaillement, le fluide est dit rhéofluidifiant. Si la viscosité croît avec le cisaillement, et le fluide est appelé rhéoépaississant. Dans la suite, nous traitons uniquement le cas d'un fluide rhéofluidifiant, de beaucoup le plus fréquent. Le comportement typique d'une viscosité non-newtonienne en fonction du cisaillement est présenté sur la figure 2.5. On

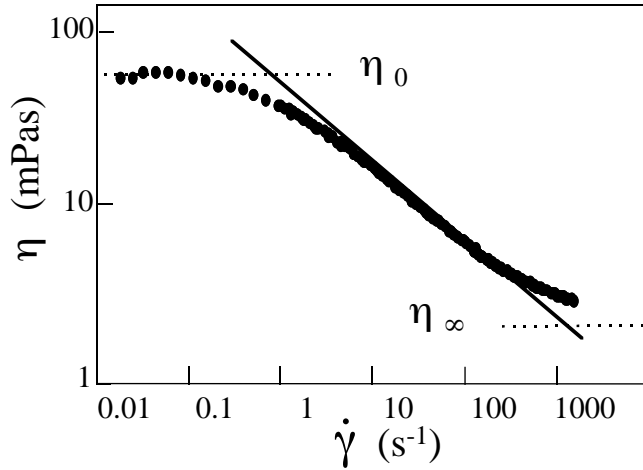


FIG. 2.5: Viscosité non-newtonienne  $\eta$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de Xanthane à 500ppm. A bas cisaillement, la viscosité est constante avec une valeur  $\eta_0$ . Pour des cisaillements plus élevés,  $\eta$  décroît avec  $\dot{\gamma}$ . Dans cette région  $\eta(\dot{\gamma})$  peut être décrite par un modèle en loi de puissance :  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équ. (2.14)), représenté par le trait solide. A très haut cisaillement, la viscosité se stabilise de nouveau sur un plateau. La valeur  $\eta_\infty$  de ce plateau n'est pas atteinte dans l'expérience montrée ci-dessus.

constate qu'à bas cisaillement, la viscosité est constante avec une valeur  $\eta_0$  qu'on appelle viscosité à cisaillement nul. Pour des cisaillements plus élevés, la viscosité décroît. A très haut cisaillement, la viscosité se stabilise de nouveau sur un plateau de valeur  $\eta_\infty$  qu'on appelle viscosité à cisaillement infini, valeur non atteinte dans l'exemple de la figure 2.5.

En pratique, la région la plus importante est souvent celle où la viscosité décroît avec le cisaillement. Dans cette région, la viscosité en fonction du cisaillement est en général bien décrite par un modèle en loi de puissance :

$$\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1} \quad (2.14)$$

qui contient deux paramètres  $k_1$  et  $n$ . Ce modèle est aussi appelé modèle d'Ostwald de Waele. La gamme de validité de ce modèle peut s'étaler sur plusieurs décades de cisaillement ou être beaucoup plus restreinte selon le polymère utilisé et la concentration de la solution.

Il y a aussi des modèles plus sophistiqués pour décrire le comportement de la viscosité en fonction du cisaillement. Le modèle suivant tient compte du plateau de la viscosité à cisaillement nul  $\eta_0$ .

$$\eta = \frac{\eta_0}{(1 + (\tau\dot{\gamma})^2)^m} \quad (2.15)$$

où  $\tau$  est un temps caractéristique de relaxation du polymère. Le modèle de Carreau tient de plus compte du plateau de la viscosité à cisaillement élevé  $\eta_\infty$ .

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{(1 + (k_1\dot{\gamma}^2))^{m_1/2}} \quad (2.16)$$

Dans beaucoup de cas, il est suffisant d'utiliser le modèle en loi de puissance (équ. (2.14)), qui a l'avantage de ne contenir que deux paramètres ajustables.

La viscosité rhéofluidifiante est responsable de l'écoulement plus rapide du capillaire rempli de solution de polymères (paragraphe 2.2.1).

### Le seuil d'écoulement

Dans certains fluides, la configuration des particules ne peut pas être facilement modifiée de manière définitive comme pour les liquides simples. En effet, il existe une structure plus ou moins rigide d'éléments en interaction qui s'étend de part et d'autre de l'échantillon. Des tels fluides sont par exemple des gels, des crèmes ou du dentifrice. Pour provoquer un écoulement à vitesse extrêmement faible, il faut imposer au fluide une contrainte qui permet d'extraire de manière définitive un nombre fini d'éléments de leur inclusion. Cette contrainte critique  $\tau_c$  est appelée seuil de contrainte. La loi de comportement  $\tau(\dot{\gamma})$  s'exprime alors :

$$\begin{aligned} \tau < \tau_c &\Leftrightarrow \dot{\gamma} = 0 \\ \tau > \tau_c &\Leftrightarrow \tau = \tau_c + f(\dot{\gamma}) \end{aligned}$$

On peut voir une représentation conceptuelle des principaux comportements en cisaillement simple pour un fluide à seuil et un fluide newtonien sur la figure 2.6. Lorsque la contrainte est inférieure à la contrainte seuil  $\tau_c$ , un comportement "solide" peut être observé. Pour des contraintes supérieures à  $\tau_c$ , on observe le comportement d'un fluide visqueux. Différents modèles, qui correspondent à différentes formes de  $f(\dot{\gamma})$  ont été proposés pour décrire ce

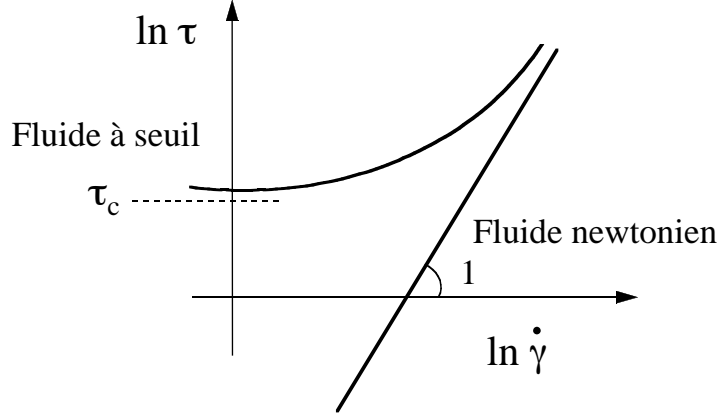


FIG. 2.6: Contrainte tangentielle  $\tau$  en fonction du cisaillement dans un diagramme logarithmique pour un fluide à seuil et un fluide newtonien.

régime. Pour un fluide qui se comporte comme un fluide rhéofluidifiant à loi de puissance au dessus du seuil,  $f(\dot{\gamma}) \propto \dot{\gamma}^n$  et on peut exprimer la contrainte de la façon suivante :

$$\tau = \tau_c + k_1 \dot{\gamma}^n \quad (2.17)$$

où on reconnaît les paramètres  $k_1$  et  $n$  du modèle en loi de puissance (équ. (2.14)). Ceci est le modèle de Herschel-Bulkley [27]. Dans la limite d'un fluide newtonien ( $n = 1$ ) on retrouve le modèle de Bingham [39] :

$$\tau = \tau_c + \eta \dot{\gamma} \quad (2.18)$$

### La contrainte normale

Dans les fluides newtoniens, la différence entre les contraintes normales sont nulles. Dans les fluides non-newtoniens, elles peuvent par contre atteindre des valeurs très élevées. Elles sont définies de la façon suivante :

$$N_1 \equiv \tau_{xx} - \tau_{yy} \equiv \Psi_1(\dot{\gamma}) \dot{\gamma}^2 \quad (2.19)$$

$$N_2 \equiv \tau_{yy} - \tau_{zz} \equiv \Psi_2(\dot{\gamma}) \dot{\gamma}^2 \quad (2.20)$$

où les fonctions  $\Psi_1$  et  $\Psi_2$  sont le premier et le deuxième coefficient de la contrainte normale.  $N_2$  est pour les solutions diluées que l'on va considérer dans la suite de plusieurs ordres de grandeurs plus petit que  $N_1$  et sera négligé. ( $N_1$  sera appelée simplement contrainte normale.)

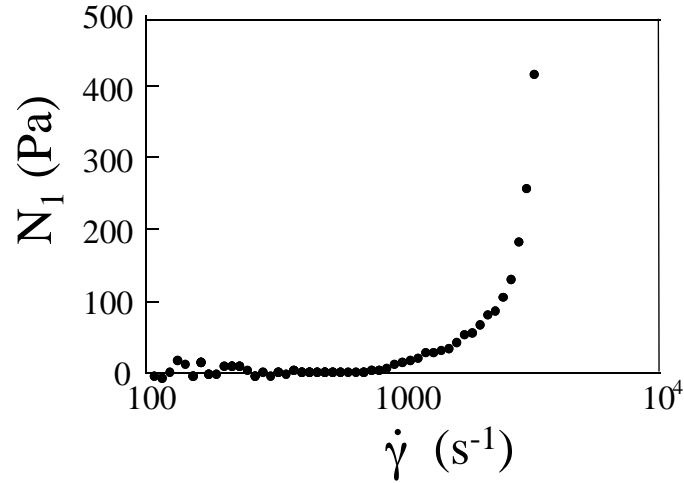


FIG. 2.7: *Contrainte normale  $N_1$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de PEO ( $M_w = 4 * 10^6$ ) à 1000 ppm.*

Sur la figure 2.7, un comportement typique de  $N_1$  en fonction du cisaillement est présenté. Les contraintes normales sont rapidement plus élevées que les contraintes visqueuses typiquement observées dans des solutions de polymères. Les contraintes visqueuses sont à cisaillement élevé ( $\sim 3000 \text{ s}^{-1}$ ) typiquement de l'ordre de  $\tau_{xy} \approx \eta \dot{\gamma} \approx 10 \text{ Pa}$  (voir par exemple figure 2.5), tandis que la contrainte normale présentée sur la figure 2.7 atteint des valeurs autour de  $N_1 = 100 \text{ Pa}$  pour de tels cisaillements.

La contrainte normale est à l'origine de l'effet Weissenberg.

Des contraintes normales non nulles sont dues à des effets élastiques dans le fluide et se manifestent dans les solutions de polymères surtout lorsque le polymère est flexible. L'existence de différences de contraintes normales non nulles dans ces fluides s'explique par le fait que le fluide devient anisotrope lors de l'écoulement. Une chaîne d'un polymère flexible est au repos en moyenne sphérique. Lors du cisaillement, cette sphère est déformée en ellipsoïde (voir fig. 2.8). Des forces tendant à restaurer la forme sphérique apparaissent. Elle sont plus grandes dans la direction de l'écoulement que dans les autres directions, car le grand axe de l'ellipsoïde est en moyenne dirigé dans la direction de l'écoulement. Ceci mène à une différence de contrainte normale  $N_1 = \tau_{xx} - \tau_{yy}$  positive.

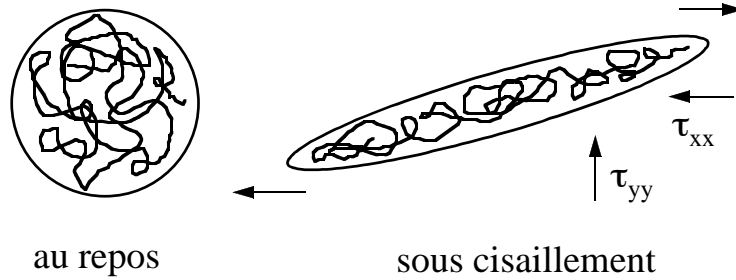


FIG. 2.8: Déformation d'une chaîne de polymère flexible sous cisaillement. Cette chaîne qui est sphérique au repos est déformée en ellipsoïde lors du cisaillement. Des forces tendant à restaurer la forme sphérique apparaissent et produisent une contrainte normale  $N_1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$  non nulle.

### 2.3.2 Elongation simple

#### Le tenseur des contraintes

Le champ de vitesse pour une élongation uniaxiale simple (voir figure 2.9) est donné par :

$$\begin{aligned} v_x &= -1/2\dot{\epsilon}x \\ v_y &= -1/2\dot{\epsilon}y \\ v_z &= +\dot{\epsilon}z. \end{aligned} \quad (2.21)$$

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

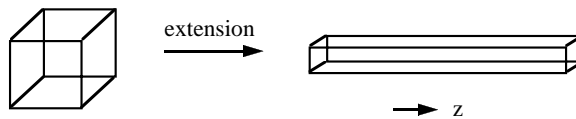


FIG. 2.9: Ecoulement d'élongation uniaxial simple

#### Le tenseur des contraintes

Le tenseur des taux de déformation s'écrit sous la forme :

$$\mathbf{D} = \dot{\epsilon} \begin{pmatrix} -1/2 & 0 & 0 \\ 0 & -1/2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

Pour les fluides newtoniens, on trouve d'après l'équation (2.5) un tenseur de contrainte de la forme suivante :

$$\boldsymbol{\pi} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} = \begin{pmatrix} -p - \eta\dot{\epsilon} & 0 & 0 \\ 0 & -p - \eta\dot{\epsilon} & 0 \\ 0 & 0 & -p + 2\eta\dot{\epsilon} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Pour les fluides non-newtoniens, il est possible de montrer par des arguments de symétrie que la forme la plus générale du tenseur des contraintes en élongation simple est la suivante :

$$\boldsymbol{\pi} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} = \begin{pmatrix} -p + \tau_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & -p + \tau_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & -p + \tau_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

Pour l'écoulement d'élongation décrit par les équation 2.21, les directions  $x$  et  $y$  sont équivalentes et il y a seulement une différence de contraintes normales non nulle :

$$\tau_{zz} - \tau_{xx} \quad (2.25)$$

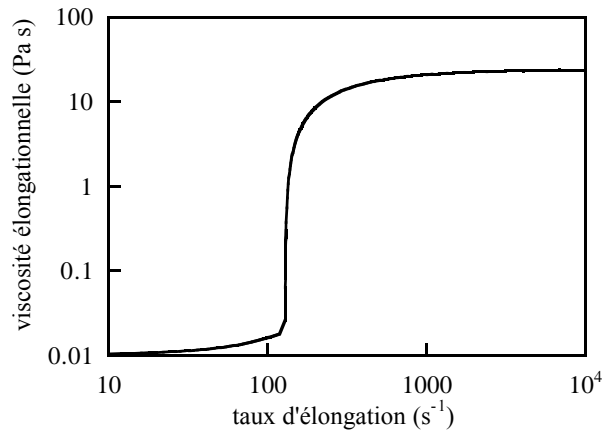


FIG. 2.10: Viscosité élongationnelle  $\eta_e$  en fonction du taux d'élongation  $\dot{\epsilon}$  d'après le modèle FENE (cf chapitre 6). A faible taux d'élongation,  $\eta_e$  est constante et vaut trois fois la viscosité  $\eta$ . Pour des taux d'élongation plus élevés, la viscosité élongationnelle croît pour se stabiliser à haut taux d'élongation de nouveau sur un plateau.

### La viscosité élongationnelle $\eta_e$

La viscosité élongationnelle décrivant la résistance du fluide à une élongation, est pour un fluide newtonien définie comme :

$$\eta_e \equiv \frac{\tau_{zz} - \tau_{xx}}{\dot{\epsilon}}. \quad (2.26)$$



Des équations (2.23) et (2.26) découle que pour les fluides newtoniens, la viscosité élongationnelle vaut trois fois la viscosité de cisaillement  $\eta_e = 3\eta$  [85]. Cette viscosité élongationnelle est donc également une constante pour les fluides newtoniens.

Pour les fluides non-newtoniens, on définit la viscosité élongationnelle de la même façon, mais celle-ci dépend alors du taux d'élongation :

$$\eta_e(\dot{\epsilon}) = \frac{\tau_{zz} - \tau_{xx}}{\dot{\epsilon}} \quad (2.27)$$

Le comportement typique de la viscosité élongationnelle en fonction du taux d'élongation, découlant du modèle théorique FENE, est présenté sur la figure 2.10. Ce modèle sera discuté en détail au chapitre 6. Pour des taux d'élongation faibles,  $\eta_e$  est constante et on peut montrer que dans ce domaine  $\eta_e$  vaut trois fois la viscosité de cisaillement  $\eta$  comme pour les fluides newtoniens. Pour des taux d'élongation plus élevés, la viscosité élongationnelle croît pour se stabiliser à haut taux d'élongation sur un nouveau plateau. La viscosité élongationnelle peut être plusieurs ordres de grandeur plus grande que la viscosité de cisaillement dans les fluides non-newtoniens.

L'origine de cette viscosité est une grande résistance des chaînes flexibles des polymères à l'étirement lors des écoulements élongationnels du fluide. La viscosité élongationnelle est donc comme la contrainte normale un effet élastique.

# Chapitre 3

## L'instabilité de Saffman-Taylor pour les fluides non-newtoniens

Lors des expériences de digitation visqueuse dans les fluides non-newtoniens, une grande variété de motifs remarquablement différents de ceux obtenus dans les fluides newtoniens a été observée. On observe par exemple un amincissement ou un élargissement des doigts, des structures fractales ou des doigts qui ressemblent à des fractures. Malheureusement la plupart des fluides utilisés possèdent plusieurs propriétés non-newtoniennes à la fois qui sont de plus, pour beaucoup de fluides, pas entièrement connues. Ceci représente un grand obstacle pour expliquer les structures observées.

Dans ce chapitre, nous présenterons les principaux travaux expérimentaux sur l'instabilité de Saffman Taylor dans les fluides complexes qui ont été réalisées jusqu'à maintenant. Nous décrirons les motifs observés lors de ces études. Une revue des études de l'instabilité dans les fluides complexes se trouvent par exemple dans les articles de revue de McCloud et Maher [63] et de Van Damme [90].

### 3.1 Amincissement des doigts

Bonn *et al.* [13, 14] ont étudié l'instabilité de Saffman-Taylor dans une solution d'un polymère rigide (Xanthane). Lorsqu'ils poussent ce fluide avec de l'air dans une cellule linéaire de Hele-Shaw, ils observent un amincissement des doigts : la largeur relative des doigts  $\lambda$  tend vers des valeurs plus petites que la limite classique de  $\lambda = 0.5$  observées pour les fluides newtoniens à vitesse élevée. Les auteurs montrent que les solutions de Xanthane sont rhéofluidifiantes et que l'amincissement des doigts pourrait être induit par cette propriété non-newtonienne des solutions. Dans cette thèse, nous approfondirons cette étude des propriétés non-newtoniennes des solutions (paragraphe 5.1.2) et discuterons

l'influence du caractère rhéofluidifiant des solutions sur l'instabilité de Saffman-Taylor en détail (Chapitres 7-9).

Smith *et al.* [83] observent également des doigts plus fins dans des solutions de polystyrène dans du dioctyl phtalate.

## 3.2 Elargissement des doigts

Dans des solutions d'un polymère flexible (PEO), Bonn *et al.* [12, 15] observent un effet très différent. Les doigts sont élargis : la largeur relative des doigts  $\lambda$  tend vers des valeurs plus élevées que la limite classique de  $\lambda = 0.5$  à vitesse élevée. Une étude de la largeur des doigts observés dans une solution de PEO préparée de façon à avoir la même viscosité non-newtonienne qu'une solution test de Xanthane révèle toujours un élargissement des doigts pour le PEO au lieu d'un amincissement comme observé pour la solutions de Xanthane [14, 13]. L'élargissement des doigts ne peut donc pas être expliqué par la viscosité non-newtonienne des solutions. Bonn *et al.* [13] montrent qu'il y a des effets de contraintes normales importants dans les solutions de PEO qui sont négligeables dans les solution de Xanthane. L'élargissement des doigts est donc très probablement dû a la présence de contraintes normales dans les solutions de PEO. Les propriétés non-newtoniennes des solutions de PEO seront déterminées précisément dans cette thèse (paragraphe 5.2 et 6). Leur influence sur l'instabilité de Saffman-Taylor sera ensuite discutée dans le chapitre 11.

## 3.3 Structures fractales

Nittman *et al.* [65] et Daccord *et al.* [30] ont découvert la formation de structures fractales dans une solution aqueuse de polysaccharide poussée par de l'eau dans une cellule de Hele-Shaw. Nittman *et al.* [65] et Daccord *et al.* [30] ont fait des expériences en cellule linéaire ainsi que en cellule radiale. La tension de surface entre les deux fluides miscibles étant très proche de zéro, on trouve des nombres capillaires  $Ca = \eta U / \sigma$  très élevés, ce qui favorise la ramification des structures formées (cf paragraphe 1.5). Des structures aussi ramifiées que celles observées lors des expériences de Nittman *et al.* n'ont cependant pas été observées lors des expériences dans des fluides newtoniens avec une tension de surface comparable. La tension de surface ne semble donc pas être la seule origine des structures observées lors des expériences de Nittman *et al.* et Daccord *et al.*. Les auteurs montrent de plus que les solutions de polysaccharide sont rhéofluidifiantes et suggèrent donc d'un côté l'importance de cette propriété non-newtonienne des solutions et de l'autre

côté l'importance de la tension de surface faible pour la formation de structures fractales.

Les structures fractales observées lors des expériences de digitation visqueuse sont souvent comparées aux motifs obtenus par le modèle de simulation numérique DLA (“diffusion limited aggregation”). Dans ce modèle [24], une particule est émise loin d’un germe central et suit une marche aléatoire sur un réseau carré. Dès que la particule visite un site voisin du germe initial, elle reste figée. Ce processus est répété un grand nombre de fois. Chaque particule reste figée dès qu’elle visite un site voisin d’un site déjà occupé. Ce processus résulte en un agrégat fractal. On peut montrer que la probabilité  $P$  pour qu’une particule visite un site donné obéit à la loi de Laplace :  $\Delta P = 0$ . La croissance des structures dans ce modèle de simulation numérique se passe donc identiquement à l’instabilité des Saffman Taylor dans un champ laplacien. Le modèle ne contient par contre pas d’équivalent de la tension de surface.

L’aspect visuel des structures fractales observées dans les expériences de Daccord *et al.* [30] dans une géométrie radiale ressemble fortement aux agrégats formés dans les simulations numériques de DLA. Les auteurs montrent que la croissance des doigts dans les expériences se fait par des branchements successifs à la pointe des doigts. Ceci est aussi typique de la croissance dans les simulations de DLA et provient de l’écrantage des zones intérieures par les doigts les plus extérieurs, sur lesquels le gradient de pression ou la probabilité de croissance sont le plus élevés. De plus Daccord *et al.* montrent que les motifs observés dans les expériences ont la même dimension fractale que les agrégats formés lors des simulations de DLA.

L’étude de la formation de structures fractales a été approfondie par Van Damme *et al.* dans des dispersions d’argiles [90, 89, 91]. Ces dispersions représentent des fluides non-

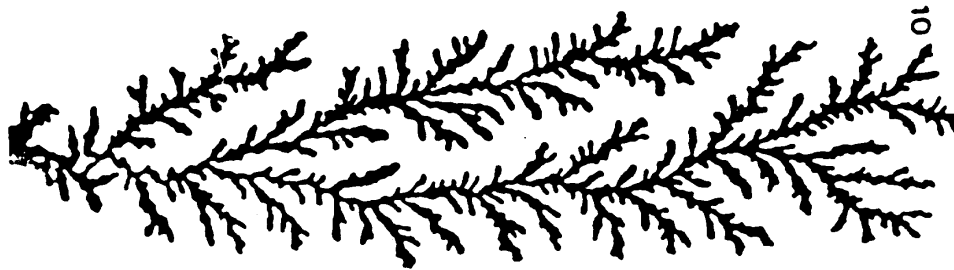


FIG. 3.1: Formation d’une structure fractale du type DLA dans une argile de concentration élevée en colloïdes poussée par de l’air dans une cellule linéaire de Hele-Shaw d’après [89].

newtoniens qui sont dans beaucoup des cas rhéofluidifiantes et présentent de plus un seuil d’écoulement. Si leur concentration en colloïdes est augmentée, des propriétés élastiques deviennent importantes.

Van Damme *et al.* [89] ont montré que même quand on pousse des suspensions faiblement non-newtoniennes avec de l'air à faible vitesse (a priori, des facteurs stabilisants) on n'observe pas de doigts stables. En augmentant la vitesse, les structures observées deviennent de plus en plus entrecoupées et irrégulières, sans qu'il soit possible de détecter une vraie cascade de branchements. Pour obtenir des structures très ramifiées qui sont clairement fractales il faut cependant augmenter la concentration en colloïdes des suspensions. Pour des concentrations suffisamment élevées, on observe des structures branchées du type DLA (Fig. 3.1) avec une largeur constante des doigts. Les auteurs montrent [92] que les motifs formés dans ce régime sont presque identiques quand l'argile est poussée par de l'eau (miscible avec la dispersion d'argile) au lieu de l'air (non miscible avec la dispersion d'argile). La dimension fractale des objets n'est par exemple quasiment pas changée. On observe seulement une diminution de la largeur moyenne des doigts. Une comparaison des structures formées quand l'argile est poussée avec de l'air ou avec de l'eau est présentée sur la figure 3.2. La tension de surface ne semble donc pas jouer un rôle important pour

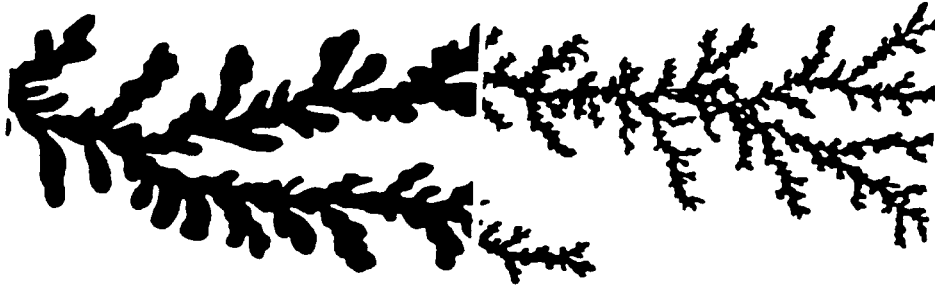


FIG. 3.2: *Comparaison des motifs formés dans une argile dans une cellule de Hele-Shaw linéaire quand l'argile est poussée avec de l'air (gauche) ou de l'eau (droite) d'après [89]. On n'observe pas de différence fondamentale dans la morphologie des structures formées.*

la formation de structures fractales comme proposé par Nittmann *et al.* [65]. Comme les argiles montrent simultanément une viscosité rhéofluidifiante avec seuil d'écoulement et des propriétés élastiques, l'origine des structures fractales ne peut pas être déterminée avec certitude.

### 3.4 Doigts ressemblant à des fractures

Van Damme *et al.* [90, 89, 91, 54] observent de plus dans les argiles discutées ci-dessus une transition des doigts visqueux non-newtoniens vers des doigts qui ressemblent à des fractures. On peut voir un exemple de cette transition dans une cellule radiale de

Hele-Shaw remplie avec un argile poussée par de l'eau sur la figure 3.3. Cette transition se

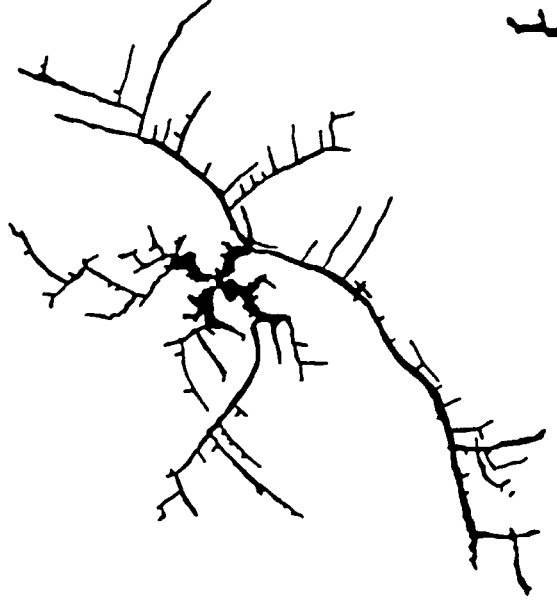


FIG. 3.3: *Transition entre un régime de doigts visqueux non-newtoniens (milieu du motif) vers un régime où les doigts ressemblent à des fractures (partie extérieure du motif) d'après [91]. Cette transition se manifeste quand soit la vitesse des doigts ou la concentration en colloïdes des argiles est augmentée. Dans l'expérience montrée ci dessus, la vitesse des doigts augmente lors de la croissance du motif en fonction de la distance du centre et induit ainsi la transition à une distance donnée du centre.*

manifeste quand la vitesse ou la concentration des suspensions augmente. Ceci correspond à une augmentation du caractère élastique des suspensions. Une mesure de l'importance des forces élastiques par rapport aux forces visqueuses est le nombre de Deborah  $De$ . Pour  $De \ll 1$ , les effets visqueux dominant, alors que  $De \gg 1$  signifie que les effets élastiques sont prépondérants. La transition se manifeste donc à des nombres de Deborah très élevés. Le motif ainsi formé se caractérise par des bouts des doigts pointus et des branchements qui se forment derrière la pointe des doigts à des angles droits. De plus, deux fractures s'attirent contrairement à deux doigts visqueux qui se repoussent. Cette répulsion observée dans le cas des doigts visqueux newtoniens est une conséquence de la loi de Darcy qui relie la vitesse locale au gradient de pression locale : si deux doigts se rapprochent, le gradient de pression entre les deux doigts diminue ce qui défavorise cette approche. L'attraction de deux fractures montre que le mécanisme de croissance dans le régime où les doigts ressemblent à des fractures est fondamentalement différent de celui des doigts visqueux.

Zhao et Maher [97] ont observé une transition similaire à celle montrée sur la figure 3.3 dans des solutions d'un polymère associatif (PEO) qu'ils poussent avec de l'eau dans



FIG. 3.4: Transition vers un doigt qui ressemble à une fracture dans une solution d'un polymère associatif qui est poussée avec de l'eau dans une cellule de Hele-Shaw linéaire d'après [43]

une cellule de Hele-Shaw radiale. Les polymères associatifs de PEO sont des molécules amphiphiles qui consistent en une chaîne de PEO hydrophile et d'alcanes hydrophobes attachés à cette chaîne. En solution aqueuse les alcanes hydrophobes essaient de minimiser le contact avec l'eau et forment ainsi un réseau associatif tridimensionnel réversible. Zhao et Maher [97] montrent que la transition d'un régime où on observe des doigts visqueux vers un régime où les doigts ressemblent à des fractures a toujours lieu à peu près au même nombre de Deborah. Il n'est cependant pas possible d'observer cette transition dans des solutions de PEO simple, même pour des nombres de Deborah très élevés. Lors de l'étude de Zhao et Maher [97] il n'a pas été possible de déterminer la propriété physique des polymères associatifs qui permet la formation de fractures. Les auteurs suggèrent que les contraintes normales pourraient jouer un rôle.

Une étude de Ignés-Mullol *et al.* [43] et de Vlad *et al.* [93] du problème plus simple de l'instabilité dans une cellule de Hele-Shaw linéaire dans les mêmes solutions de polymères permet de mieux comprendre la transition entre les doigts visqueux et les doigts qui ressemblent à des fractures. Comme auparavant, il n'est pas possible d'observer des doigts qui ressemblent à des fractures dans les solutions de PEO simple. Dans les solutions de PEO associatif on peut cependant observer un doigt qui ressemble tout d'abord à un doigt classique de Saffman-Taylor puis diminue subitement en largeur et ressemble ensuite à une fracture (Fig 3.4). Cette transition s'accompagne d'un saut de vitesse du doigt. Une étude des contraintes de cisaillement en fonction du cisaillement, dans les expériences de digitation visqueuse, révèle une dépendance non-monotone entre ces deux grandeurs lors d'expériences dans lesquelles on observe une transition vers des doigts qui ressemblent à des fractures. Lors des expériences où on n'observe pas de doigts qui ressemblent à des fractures, cette dépendance est monotone. La non-monotonie entre la contrainte et

le cisaillement dans les solutions de PEO associatif pourrait donc être connectée à la formation de doigts qui ressemblent à des fractures.

Des motifs qui ressemblent à ceux observés dans les solutions de PEO associatif ont été observés lors d'expériences par Greffier *et al.* [37] dans lesquelles de l'azote est injecté dans une solution concentrée du surfactant AOT dans de l'eau salée. Selon la salinité des solutions, celles-ci forment des phases différentes. Pour des concentrations basses en sel,

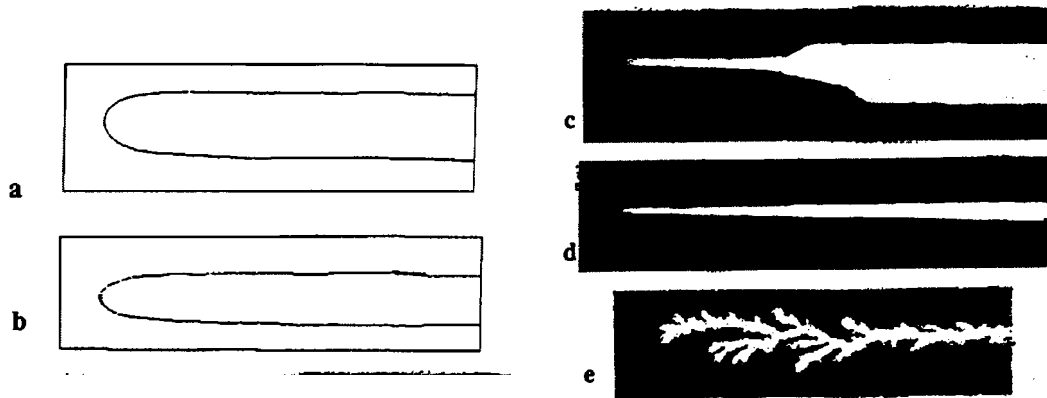


FIG. 3.5: *Doigts observés dans une cellule linéaire remplie avec une solution concentrée du surfactant AOT poussée par de l'azote d'après [37]. Selon la salinité de ces solutions, celles-ci forment des phases différentes dans lesquelles des motifs différents sont observés. Dans la phase éponge, les doigts ressemblent à des doigts classiques de Saffman-Taylor (a et b) à l'exception de leur largeur relative qui peut être plus petite que la limite classique de  $\lambda = 0.5$  (des fluides newtoniens à haute vitesse). Dans le phase lamellaire, on observe la transition du doigt visqueux vers une doigts très fin ressemblant à une aiguille (c et d). Dans la phase des spherulites on observe des structures ramifiées (e).*

dans la phase des spherulites (un gel très visqueux), Greffier *et al.* observent des doigts ramifiés (Fig. 3.5 e). Pour des concentrations plus élevées en sel, la phase des sphérulites se transforme en une phase lamellaire (une phase fluide dont la viscosité est rhéofluidifiante) et les auteurs ont décrit la transition du doigt visqueux vers une aiguille très fine (Fig. 3.5 c et d). Cette aiguille ressemble aux fractures observées dans les solutions de PEO associatif (Fig. 3.4). Pour des concentrations de sel encore plus élevées, dans la phase éponge, les doigts ressemblent à un doigt de Saffman-Taylor classique, à l'exception de sa largeur relative qui décroît en dessous de la limite classique de  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse (Fig. 3.5 a et b).

Les solutions de AOT présentent comme les solutions de PEO associatif une dépendance non monotone entre la contrainte et le cisaillement, ce qui engendre des écoulements bistables. L'apparition d'aiguilles pourrait donc comme les fractures dans les solutions de



PEO associatifs, être liée à la bistabilité de l'écoulement. Greffier *et al.* [37] montrent de plus qu'il y a une corrélation entre la structure très anisotrope de la phase lamellaire induite par l'écoulement et la formation de doigts fins qui ressemblent à des aiguilles.

## 3.5 Autres motifs

### 3.5.1 Les cristaux liquides

Un grand nombre d'expériences a été réalisé dans des cristaux liquides. Lors des expériences en cellule radiale, un grand nombre de motifs, qui peuvent être reliés à la phase dans laquelle se trouve le cristal liquide utilisé, a été observé. Nous présentons ici quelques

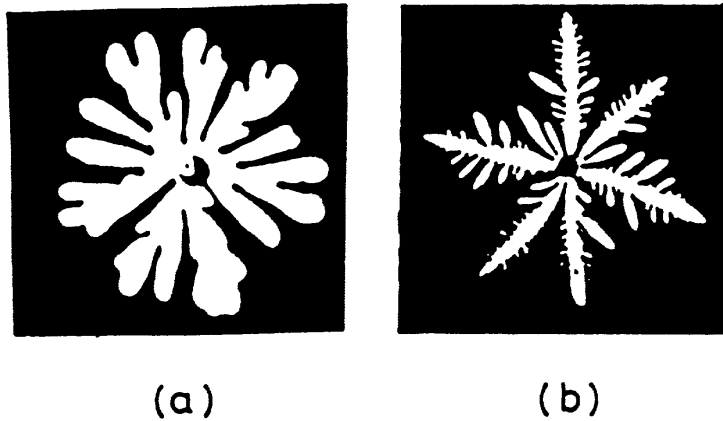


FIG. 3.6: Observations en cellule radiale dans le cristal liquide 8CB poussé par de l'air d'après [17] : a) motif de "branchement dense" observé dans la phase isotrope b) motif de "dendrites espacées" observé dans la phase nématique.

résultats d'une étude de Buka *et al.* [17, 18] dans le cristal liquide 8CB en cellule radiale où de l'air est utilisée comme fluide moins visqueux. Ce matériau montre une transition d'une phase isotrope vers une phase nématique quand il est refroidi. Dans la phase isotrope, on observe un motif que Buka *et al.* [17, 18] appellent "branchements dense" (Fig. 3.6 a). On voit le motif observé dans la phase nématique sur la figure 3.6 b. Ce motif est appelé "dendrites espacées".

### 3.5.2 Mousse à raser

Park et Durian [68] ont étudié la digitation visqueuse dans une cellule de Hele-Shaw radiale remplie de mousse à raser commerciale. Comme fluide moins visqueux, ils utilisent

de l'air. A haute vitesse, ils observent des structures de doigts lisses (Fig. 3.7 a) qui ressemblent beaucoup aux structures observées dans des fluides newtoniens en cellule radiale. A basse vitesse, ils observent des doigts rugueux (Fig. 3.7 b). Les auteurs tentent de relier le cisaillement, auquel la transition entre les deux motifs observés intervient, à un temps de relaxation interne de la mousse comme par exemple le temps de réarrangement des bulles.

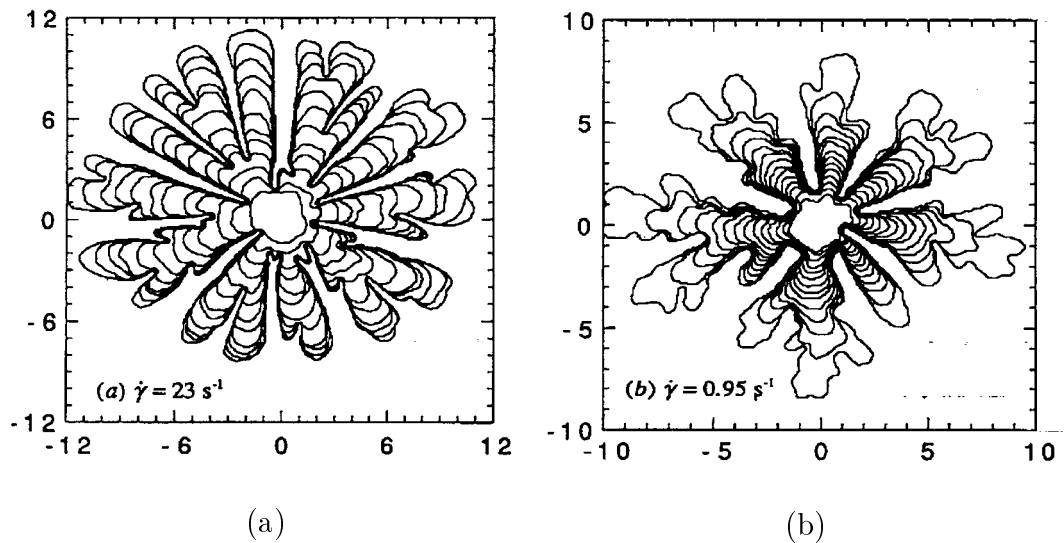


FIG. 3.7: Motifs observés lors d'une expérience de digitation visqueuse dans une mousse à raser commerciale poussée par de l'air d'après [68] : a) doigts lisses observés à haute vitesse b) doigts rugueux observés à basse vitesse.

Nous avons également effectué des expériences de digitation visqueuse dans une mousse en cellule radiale. Les résultats obtenus en poussant la mousse avec de l'eau seront présentés dans l'appendice de cette thèse.

### 3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons montré que l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides non-newtoniens est très riche en motifs. On y observe un amincissement ou élargissement des doigts (par comparaison au cas newtonien classique) ou bien des structures fractales ou des doigts ressemblant à des fractures. Cette grande variété d'observations expérimentales a aussi motivé des études théoriques de l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes. Les analyses des références [12, 15, 50, 51, 4, 5, 23, 96] traitent l'instabilité dans des fluides dont la viscosité est non-newtonienne, tandis que les références [75, 74,

96, 31] traitent le cas des fluides qui possèdent des effets élastiques. Malheureusement, les propriétés non-newtoniennes des fluides utilisés lors des expériences décrites ci-dessus ne sont dans beaucoup de cas pas entièrement connues. Ceci ne permet pas de relier les propriétés rhéologiques aux motifs observés dans les expériences de digitation visqueuse dans ces fluides.

Dans la suite de cette thèse, nous considérons des fluides qui ne possèdent chacun essentiellement qu'une seule propriété non-newtoniennes, de façon que les autres puissent être négligées. Ceci nous permet d'étudier séparément l'effet sur l'instabilité de Saffman-Taylor de ces propriétés non-newtoniennes et de relier ainsi systématiquement les propriétés rhéologiques des fluides à la formation de motifs en cellule de Hele-Shaw.

## Deuxième partie

### La rhéologie



# Chapitre 4

## Techniques de mesures rhéologiques

Les principales techniques rhéologiques sont par exemple présentées dans les livres de Barnes [3], Makoskov [62] et Coussot [28]. Ici, nous allons introduire les méthodes utilisées dans la suite pour caractériser les fluides dans lesquels nous allons étudier l'instabilité de Saffman-Taylor (troisième partie de cette thèse).

Dans les premiers paragraphes, nous présenterons les méthodes rhéologiques pour déterminer la viscosité non-newtonienne, la contrainte normale et le seuil d'écoulement d'un fluide. La détermination de la viscosité élongationnelle étant délicate, nous consacrons le chapitre 6 à celle-ci. De plus, nous expliquerons la détermination de la concentration  $c^*$ , qui est importante pour la caractérisation des solutions de polymères.

Dans le dernier paragraphe, nous décrirons le rhéomètre utilisé pour nos mesures rhéologiques.

### 4.1 Détermination de la viscosité non-newtonienne

Beaucoup de rhéomètres utilisent un mouvement de rotation pour engendrer des écoulements de cisaillement simple. Pour déterminer la contrainte  $\tau$  en fonction du cisaillement et en déduire la viscosité  $\eta(\dot{\gamma}) = \tau/\dot{\gamma}$ , il y a deux méthodes possibles. On peut soit faire tourner une partie de la géométrie à une vitesse de rotation donnée, imposant ainsi le cisaillement et ensuite mesurer le couple qui en résulte ou bien appliquer un couple bien défini, imposant ainsi la contrainte, et mesurer la vitesse de rotation qui en découle.

Les mesures de viscosité présentées dans la suite sont toujours effectuées à cisaillement imposé en utilisant deux géométries différentes : la géométrie Couette et la géométrie cône-plan.

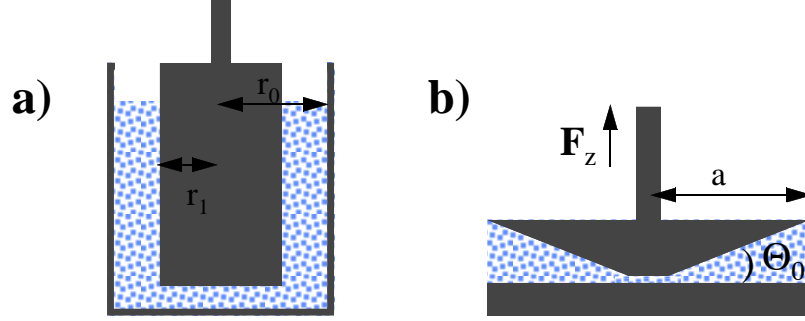


FIG. 4.1: a) La géométrie Couette est constituée de deux cylindres coaxiaux.  $r_0$  est le rayon du cylindre extérieur et  $r_1$  le rayon du cylindre intérieur. Le cylindre intérieur tourne à une vitesse de rotation  $\Omega$  alors que le cylindre extérieur est fixe. b) La géométrie cône-plan consiste en un cône tronqué et un disque coaxiaux de même rayon  $a$ . L'angle d'ouverture du cône est  $\Theta_0$ . Le fluide test remplit l'espace entre ces deux outils.  $\Omega$  désigne la vitesse de rotation du cône. Cette géométrie permet de déterminer la force normale  $F_z$  exercée sur le cône.

### La géométrie cône-plan

La géométrie cône-plan est constituée d'un disque et d'un cône tronqué de même diamètre, dont le sommet fictif est situé sur le disque. Le cône et le disque sont coaxiaux et dans la suite nous considérons le cas où le cône tourne avec une vitesse  $\Omega$  et le disque est fixe. Le fluide test remplit l'espace entre les deux parties du système de mesure (Fig. 4.1 b).

La vitesse locale d'un point du cône situé à une distance  $r$  de l'axe vaut  $\Omega r$ . En supposant un profil de vitesse du fluide variant linéairement entre le disque et le cône, le gradient de vitesse vaut :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega r}{h(r)} = \frac{\Omega}{\tan \Theta_0}. \quad (4.1)$$

où  $h(r)$  est l'épaisseur locale de fluide. Cette approximation est valable dans le cas où  $\Theta_0$  est inférieur à quelques degrés [28]. On constate ainsi que le cisaillement ne dépend pas de la distance à l'axe. Le fait de cisailier le fluide entre un cône et un plan permet donc de s'affranchir de la variation du gradient résultant de l'éloignement de l'axe pour un cisaillement entre deux plans. Ceci a pour conséquence supplémentaire que la contrainte tangentielle est constante au sein de l'échantillon. On peut donc écrire directement la relation entre le couple total  $C$  appliqué sur l'axe et cette contrainte  $\tau$  [28] :

$$\tau = \frac{3C}{2\pi a^3} \quad (4.2)$$

où  $a$  est le rayon du cône. Des équations (4.1) et (4.2), on déduit :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = \frac{3C \tan \Theta_0}{2\pi a^3 \Omega}. \quad (4.3)$$

La gamme de cisaillement accessible dans cette géométrie est limitée par la sensibilité de l'appareil aux cisaillements faibles. Aux cisaillements élevés, des écoulements secondaires peuvent apparaître limitant ainsi la fréquence maximale de rotation [3].

### La géométrie Couette

La géométrie Couette est constituée de deux cylindres coaxiaux en rotation relative.  $r_0$  désigne le rayon du cylindre extérieur et  $r_1$  le rayon du cylindre intérieur. Dans la suite, nous considérons le cas où le cylindre intérieur tourne à la vitesse  $\Omega$  tandis que le cylindre extérieur est fixe. L'intervalle entre les deux cylindres est rempli avec le fluide dont on veut mesurer la viscosité (Fig. 4.1 a).

Un des inconvénients majeurs de cette géométrie réside dans l'hétérogénéité de la contrainte  $\tau$  dans l'intervalle entre les deux cylindres. En effet, on peut montrer d'après l'équation de Navier Stokes (équ. (2.7)) que la relation liant le couple  $C$  à  $\tau$  s'écrit [28] :

$$\tau = \frac{C}{2\pi r^2 l} \quad (4.4)$$

où  $l$  est la hauteur du cylindre et  $r$  la distance à l'axe central. Le couple  $C$  appliqué au cylindre intérieur est transmis à travers tout l'échantillon et est par conséquent constant à travers chaque cylindre fictif intermédiaire. L'équation (4.4) montre donc que la contrainte tangentielle  $\tau$  varie comme l'inverse au carré de la distance à l'axe. Il en résulte que le gradient de vitesse n'est pas homogène dans l'intervalle entre les deux cylindres.

Lorsque l'intervalle entre les deux cylindres est petit ( $\frac{r_1}{r_0} > 0.99$ ), la courbure des cylindres peut être négligée et on se retrouve dans une situation similaire au cisaillement entre deux plaques. Considérant ainsi que le gradient de vitesse est homogène, on obtient :

$$\dot{\gamma} = \frac{r_1 \Omega}{r_0 - r_1} \quad (4.5)$$

La viscosité  $\eta = \tau/\dot{\gamma}$  découle des équations (4.5) et (4.4) considérée en  $r = r_1$  :

$$\eta = \frac{C (r_0 - r_1)}{2\pi r_0^3 \Omega L} \quad (4.6)$$

où  $L$  est ici la longueur effective sur laquelle le fluide est cisailé. Dû à des effets de bord,  $L$  n'est pas identique à la longueur réelle des cylindres. Mais ces effets de bord sont pris en compte implicitement lors de l'étalonnage du rhéomètre.



Souvent l'espace entre deux cylindres est trop grand ce qui ne permettent pas d'utiliser l'approximation de l'intervalle faible. Dans ce cas, le cisaillement dans l'intervalle n'est pas homogène. Pour pouvoir calculer ce cisaillement, le profil de vitesse entre les deux cylindres doit être connu.

Pour un fluide non-newtonien, la situation est compliquée par le fait que ce profil dépend des propriétés non-newtoniennes du fluide. Le cisaillement dépend donc maintenant des propriétés du liquide dont on veut mesurer la viscosité. On comprend maintenant le terme de "viscosité apparente" des fluides non-newtoniens utilisé en rhéologie et introduite au chapitre 2. A l'exception de quelques géométries simples (cône-plan, Couette avec un intervalle très petit), le cisaillement n'est pas homogène au sein du fluide lors d'une expérience de rhéologie. Dans un fluide non-newtonien, l'inhomogénéité de ce cisaillement dépend des propriétés non-newtoniennes du fluide. Ces propriétés ne sont à priori pas connues. On n'a donc pas accès à une expression exacte du cisaillement présent dans le fluide non-newtonien. Pour déterminer la viscosité d'un fluide non-newtonien, on utilise normalement l'expression du cisaillement pour un fluide newtonien dans la géométrie particulière utilisée. La viscosité ainsi mesurée est désignée "viscosité apparente" [28] et dépend de cette géométrie.

Dans certaines cas, il est cependant possible de tenir compte des modifications du cisaillement introduit par le caractère non-newtonien du fluide. En supposant par exemple une dépendance en loi de puissance pour la contrainte en fonction du cisaillement, on peut évaluer le cisaillement sur le cylindre intérieur :

$$\dot{\gamma} = \frac{2\Omega}{n(1 - b^{2/n})} \quad (4.7)$$

où  $b = r_1/r_0$  et  $n$  est l'exposant du modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1\dot{\gamma}^{n-1}$  (équ.(2.14)). La valeur de  $n$  peut être déterminée en fonction du couple  $C$  et de la vitesse de rotation  $\Omega$  :

$$n = \frac{d \log C}{d \log \Omega} \quad (4.8)$$

La viscosité  $\eta = \tau/\dot{\gamma}$  correspondant au cisaillement sur le cylindre intérieur (équ. (4.7)) découle de l'équation (4.4) :

$$\eta = \frac{Cn(1 - b^{2/n})}{4\pi r_1^2 L \Omega}. \quad (4.9)$$

Pour beaucoup d'instruments dont l'intervalle n'est pas trop large, il est cependant possible d'utiliser l'approximation du fluide newtonien  $n = 1$  dans l'équation (4.7) [62]. L'erreur due à cette approximation pour un fluide à loi de puissance est donnée par :

$$\frac{\dot{\gamma}_{\text{loi de puissance}}}{\dot{\gamma}_{\text{newtonien}}} = \frac{1 - b^2}{n(1 - b^{2/n})} \quad (4.10)$$

Pour  $n = 0.5$  et  $b = 0.9$ , on obtient ainsi un erreur de 10 %.

La gamme de cisaillements accessible avec un tel système est limitée par la précision de l'appareil pour les bas cisaillements. Pour des cisaillements élevés, la transition vers un régime de rouleaux de Taylor ou vers la turbulence déterminent la fréquence de rotation maximale [3] utilisable.

## 4.2 Détermination de la contrainte normale

La contrainte normale peut être déterminée à l'aide d'une géométrie cône-plan qui permet de mesurer la force normale  $F_z$  exercée sur l'axe du cône par le fluide cisailé (Fig. 4.1 b). On peut montrer [62] que la contrainte normale s'écrit de la façon suivante :

$$N_1 = \frac{2F_z}{a^2\pi} \quad (4.11)$$

où  $a$  est le rayon du cône. On obtient ainsi la contrainte normale  $N_1$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma} = \Omega / \tan \Theta_0$  (équation (4.1)) où  $\Omega$  est la vitesse de rotation et  $\Theta_0$  l'angle d'ouverture du cône.

Ces résultats doivent cependant être corrigés par des effets d'inertie et d'écoulements secondaires. Les forces d'inertie tendent à attirer les plaques l'une vers l'autre, contrairement aux contraintes normales qui tendent à les séparer. Cette force d'inertie est donnée par [62] :

$$(F_z)_{\text{inertie}} = -0.075\pi\rho\Omega^2 a \quad (4.12)$$

où  $\rho$  est la densité du fluide, et induit donc l'équivalent d'une contrainte normale négative. Ce résultat a été confirmé expérimentalement avec les fluides newtoniens et est supposé rester valable aussi pour les fluides non-newtoniens [62]. Pour des angles  $\Theta_0$  un peu plus élevés, les écoulements secondaires peuvent devenir importants. Pour les fluides newtoniens, la force  $F_z$  induite par ces écoulements peut être estimée par [62] :

$$(F_z)_{\text{écoulement secondaire}} = (F_z)_{\text{inertie}} 4 * 10^{-3} Re \quad (4.13)$$

où  $Re = \frac{\rho\Omega\Theta_0^2 a^2}{\eta}$  est le nombre de Reynolds. Il est souvent suffisant de corriger les valeurs de  $N_1$  obtenues à partir de l'équation (4.11) par les forces d'inertie (équ. (4.12)) sans tenir compte des effets d'écoulements secondaires (équ. (4.13)) [62].

Additionnellement, un réglage imparfait des parties du système de mesure, comme par exemple un décalage du cône par rapport à l'axe, peut introduire des perturbations sur les mesures.

## 4.3 Détermination du seuil d'écoulement

### 4.3.1 Le plan incliné

La technique d'écoulement sur un plan incliné exploite la caractéristique essentielle des fluides à seuil qui est la formation d'une couche immobile d'épaisseur significative sur des plans de pente non nulles ; ceci permet la détermination du seuil de contrainte. Un effet similaire peut, par exemple, être observé avec du dentifrice déposé sur une brosse à dent ; le dentifrice supporte son propre poids.

Lors de l'écoulement d'un fluide sur un plan incliné, la contrainte tangentielle au sein du fluide varie en fonction de la distance au plan. Un bilan des forces s'exerçant sur un portion du fluide (Fig. 4.2) située à la hauteur  $y$  par rapport au plan solide nous permet

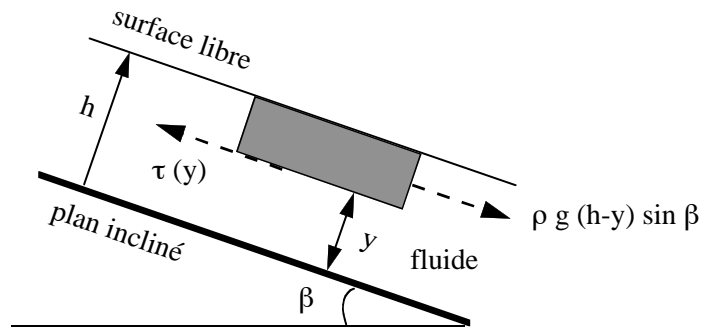


FIG. 4.2: Distribution des forces exercées sur une portion de fluide en écoulement sur un plan incliné. La contrainte tangentielle  $\tau(y)$  varie en fonction de  $y$ . Pour  $y$  inférieure à une certaine valeur  $y_c$ , cette contrainte  $\tau(y_c)$  est inférieure à la contrainte seuil  $\tau_c$ . Dans cette zone, il n'y a pas d'écoulement possible.

de trouver l'expression de la contrainte selon une couche de fluide parallèle à ce plan :

$$\tau = \rho g (h - y) \sin \beta \quad (4.14)$$

ou  $h$  est l'épaisseur de la couche de fluide,  $\rho$  sa densité et  $\beta$  l'angle d'inclinaison de la planche. Le cisaillement résultant varie donc en fonction de  $y$ . L'expression de la contrainte (équation (4.14)) montre qu'au delà d'une certaine hauteur  $h_0$  au dessus de support, la contrainte tangentielle est inférieure à  $\tau_c$  :

$$h_0 = \frac{\tau_c}{\rho g \sin \beta} \quad (4.15)$$

Dans cette zone, il n'y a donc pas d'écoulement possible. Lorsque l'épaisseur de fluide est plus faible que cette épaisseur  $h_0$  l'écoulement du fluide s'arrête. Il devient possible de déterminer le seuil de contrainte en mesurant cette épaisseur critique.

### 4.3.2 Le rhéomètre

Dans le rhéomètre, la détermination d'un seuil d'écoulement se fait généralement par des mesures à contrainte imposée [28] : il faut imposer des valeurs croissantes de contrainte et déterminer la limite au delà de laquelle un écoulement est obtenu.

Cette technique permet d'estimer assez rapidement la valeur du seuil de contrainte, mais ne s'avère pas très pratique pour déterminer  $\tau(\dot{\gamma})$  pour une large gamme de cisaillement. Pour ce type de mesures, des expériences à vitesse imposées sont mieux adaptées. Il s'avère utile de combiner ces deux méthodes [28].

Lors d'expériences dans les fluides à seuil, en géométrie plan-plan ou cône-plan on observe souvent un phénomène appelé creusement [28] : la périphérie de l'échantillon initialement verticale se déforme au cours du cisaillement vers l'intérieur du matériau (Fig. 4.3). La profondeur du creux formé par rapport à la surface initiale est désignée par

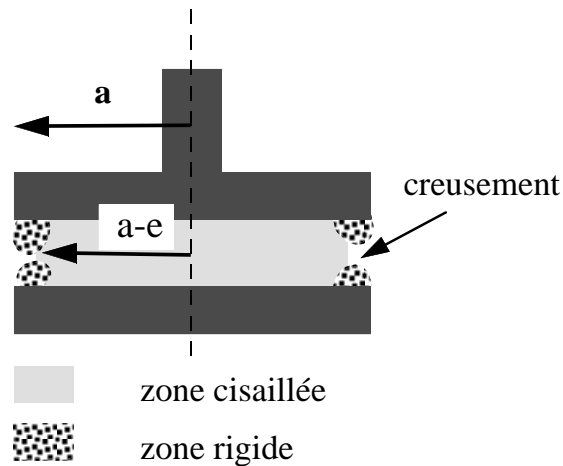


FIG. 4.3: Aspect du creusement qui se forme lors d'une expérience de rhéométrie dans une géométrie plan-plan ou cône-plan. Les lèvres de la zone incurvée vers l'intérieur de l'échantillon (bourrelets) ne sont pas cisailées.

*e.* On peut montrer [28] que le fluide n'est pas cisailé dans les deux bourrelets en contact avec les outils et situés au dessus et en dessous du creux, alors que le reste du matériau semble être correctement cisailé. Ainsi, le volume réellement cisailé est différent de celui utilisé à priori pour les calculs. En première approximation, il est suffisant d'effectuer

une correction sur le rayon  $a$  de la géométrie (Fig. 4.3) qui détermine le volume. Pour une géométrie cône-plan, par exemple, la contrainte ( $\tau_{\text{réel}}$ ) s'appliquant réellement sur le matériau est (cf équation (4.2)) :

$$\tau_{\text{réel}} = \frac{3C}{2\pi(a-e)^3} = \left(\frac{a}{a-e}\right)^3 \tau_{\text{app.}} \quad (4.16)$$

où  $\tau_{\text{app.}}$  est la contrainte déduite directement des mesures en supposant que tout le volume de matériau est cisailé. Le creusement conduit donc à sous estimer la viscosité du matériau étudié.

## 4.4 Détermination de la concentration $c^*$

La concentration  $c^*$  est un paramètre important pour caractériser les solutions de polymères. Elle indique la concentration à partir de laquelle l'enchevêtrement des polymères devient important. Dans ce paragraphe, nous décrirons deux méthodes différentes qui permettent de la déterminer.

A très basse concentration, les propriétés des solutions sont uniquement affectées par la nature des chaînes individuelles de polymères. La viscosité à cisaillement nul  $\eta_0$  pour une suspension diluée de particules sphériques et rigides s'écrit d'après la relation d'Einstein [7] :

$$\eta_0 = \eta_s (1 + 2.5\phi + \dots) \quad (4.17)$$

où  $\phi$  est la fraction volumique. Cette loi peut aussi être appliquée à des solutions très diluées de polymères [19, 78] où la fraction volumique s'écrit :

$$\phi = \frac{4}{3} r_g^3 \pi c \frac{\mathcal{N}_A}{M_W} \quad (4.18)$$

$M_W$  est la masse moléculaire,  $\mathcal{N}_A$  le nombre d'Avogadro,  $c$  la concentration en  $\text{g}/\text{m}^3$  et  $r_g$  le rayon de gyration du polymère en solution. Le rayon de gyration  $r_g$  d'un polymère représente le rayon du volume effectivement occupé par ce polymère  $\frac{4}{3}r_g^3\pi$ . On peut montrer [19, 78] que ce rayon est pour un polymère rigide identique à la longueur du bâton rigide formé par le polymère (Fig. 4.4 a) et pour un polymère flexible identique au rayon de la pelote formée par ce polymère (Fig. 4.4 b). Le polymère rigide occupe ainsi un volume effectif beaucoup plus grand que le polymère flexible pour une longueur de chaîne identique. Notons que le volume effectif ainsi défini occupé par un polymère est dans les deux cas beaucoup plus grand que son propre volume.

A partir d'une certaine concentration, l'enchevêtrement des polymères devient important. Cet enchevêtrement modifie les propriétés de la solution et entre autres la relation

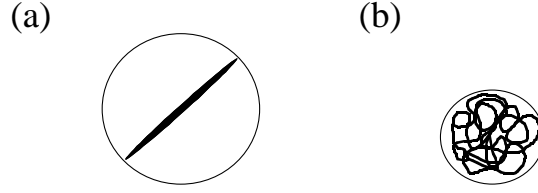


FIG. 4.4: (a) le volume effectif occupé par un polymère rigide et (b) par un polymère flexible

d'Einstein (4.17) ne peut plus être tronqué après le premier ordre. La concentration à partir de laquelle cet enchevêtrement devient important est appelée  $c^*$ . Une solution est qualifiée de diluée pour des concentrations inférieures à  $c^*$ .

Cette concentration  $c^*$  est définie comme la concentration pour laquelle le volume effectif occupé par les polymères est égal au volume total du système [35]. Ceci signifie que la fraction volumique  $\phi$  est égale à 1. De l'équation (4.18) découle :

$$c^* = \frac{M_w}{\mathcal{N}_A \frac{4}{3} \pi r_g^3} \quad (4.19)$$

Ainsi défini le volume effectif occupé par un polymère étant beaucoup plus grand que son propre volume, cette définition ne signifie pas que les chaînes de polymères remplissent entièrement le volume total du système. Comme les polymères en solution ne sont pas distribués de façon homogène dans le volume et suivent de plus un mouvement brownien, il n'y a pas de concentration non nulle à laquelle les polymères ne s'enchevêtrent absolument pas. Mais on observe une augmentation continue de cet enchevêtrement à mesure que la concentration des solutions augmente.  $c^*$  ne représente donc pas une concentration à laquelle il y a un changement de comportement abrupt des solutions mais donne plutôt une ordre de grandeur de la concentration à partir de laquelle l'enchevêtrement devient important.

Il y a plusieurs méthodes pour déterminer  $c^*$ . Il est premièrement possible de le déduire de la relation (4.19) en connaissant le rayon de gyration  $r_g$  des polymères. Ce rayon de gyration peut être déterminé en diffusion de lumière [7].

Une autre possibilité est de déterminer  $c^*$  à partir des mesures de viscosité. Pour cela, il est nécessaire de déterminer la viscosité intrinsèque  $[\eta]$  définie de la façon suivante :

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s} \right) \quad (4.20)$$

où  $\eta_s$  est la viscosité du solvant. Le produit entre la viscosité intrinsèque et  $c^*$  est souvent supposé constant [82]. Pour beaucoup de systèmes, il est possible de montrer que cette

constante est de l'ordre de 1 [34].

$$c^* [\eta] = 1 \quad (4.21)$$

Nous montrerons dans la suite que cette relation est liée à la définition de  $c^*$  comme étant la concentration à laquelle la fraction volumique  $\phi = 1$ . Pour cela nous écrivons la viscosité intrinsèque  $[\eta]$  à l'aide de la relation d'Einstein (équ. (4.17))  $\eta_0 = \eta_s (1 + 2.5\phi + \dots)$  de la façon suivante :

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s} \right) = \lim_{c \rightarrow 0} (2.5\phi/c + \dots) \quad (4.22)$$

Notons que  $\phi$  étant proportionnel à  $c$  le terme  $\phi/c$  est une constante indépendante de  $c$  et correspond à la viscosité intrinsèque  $[\eta]$ . On voit ainsi que la définition  $\phi = 1$  mène également à une valeur  $[\eta]c^*$  de l'ordre de 1 ce qui conduit à l'équation (4.21).

## 4.5 Le rhéomètre utilisé

Nos mesures de rhéologie sont effectuées à l'aide d'un rhéomètre Reologica Stress Tech. Il s'agit d'un rhéomètre multifonction relié à un PC. Nous disposons des géométries suivantes (Fig. 4.5) :

- Une géométrie cône-plan d'un rayon de  $a = 27.5$  mm et d'une angle d'ouverture de cône de  $\Theta_0 = 0.5^\circ$ , qui sera appelée C55 dans la suite. Cette géométrie permet d'effectuer des mesures dans la gamme de cisaillement de  $100 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 6000 \text{ s}^{-1}$ .
- Une géométrie cône-plan d'un rayon de  $a = 25$  mm et d'une angle d'ouverture de cône de  $\Theta_0 = 1^\circ$ , qui sera appelée C50 dans la suite. Cette géométrie permet d'effectuer des mesures dans la gamme de cisaillement de  $100 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 2000 \text{ s}^{-1}$ .
- Une géométrie Couette à double gap constituée d'un cylindre tournant de rayon  $r = 20$  mm et de deux gaps de même largeur  $b = 1.7$  mm. Cette géométrie sera appelée DG dans la suite. Elle permet de faire des mesures dans la gamme de cisaillements de  $1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 500 \text{ s}^{-1}$ . La valeur  $r_0/r_1$  définie au paragraphe 4.1 est ici  $(r - b)/r = 0.96$ . Ceci signifie que la géométrie DG doit être considérée comme une géométrie Couette à gap large.

Lors des expériences, le rhéomètre détermine la vitesse de rotation  $\Omega$  et le couple  $C$ . Pour les géométries cône-plan, le rhéomètre calcule le cisaillement  $\dot{\gamma}$  à l'aide de l'équation (4.1). La relation entre la contrainte  $\tau$  et le couple  $C$  est déterminée par étalonnage par rapport à l'eau. Pour la géométrie Couette, le cisaillement  $\dot{\gamma}$  en fonction de la vitesse de rotation  $\Omega$  est calculé avec l'équation (4.7) pour des gaps larges. Comme auparavant, la relation entre la contrainte  $\tau$  et le couple  $C$  mesuré est déterminée par un étalonnage avec de l'eau. Il est ainsi possible de remonter à la viscosité  $\eta(\dot{\gamma}) = \tau/\dot{\gamma}$  à partir des mesures de

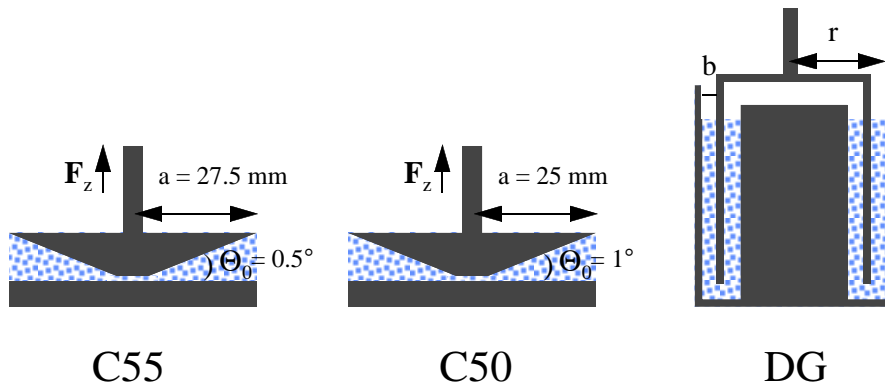


FIG. 4.5: La géométrie cône-plan C55, la géométrie cône-plan C50 et la géométrie Couette à double gap du rhéomètre Reologica Stress Tech.

la vitesse de rotation  $\Omega$  et du couple  $C$ . Les géométries cône-plan permettent de plus de mesurer la force normale  $F_z$ .

Quelques mesures dans la mousse seront effectuées dans une géométrie plan-plan d'un rayon  $a = 20 \text{ mm}$  qui est appelée P40. De plus, quelques mesures à très bas cisaillement ( $0.01 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 100 \text{ s}^{-1}$ ) ont été effectuées à l'aide d'un rhéomètre Contraves LS30 à l'Institut Français du Pétrole dans une géométrie de Couette.





# Chapitre 5

## Caractérisation des fluides

Dans ce chapitre, nous caractériserons les fluides non-newtoniens dans lesquels l'instabilité de Saffman-Taylor sera étudiée dans la suite (troisième partie de cette thèse). Les fluides utilisés sont une solution d'un polymère rigide (Xanthane), une solution d'un polymère flexible (PEO), un gel de polymère (gel coiffant commercial) et une mousse (mousse à raser commerciale). Nous avons choisi ces fluides car ils ne possèdent chacun essentiellement qu'une seule propriété non-newtonienne, de façon que les autres puissent être négligées.

Dans la suite, nous déterminerons la viscosité non-newtonienne et la contrainte normale de ces fluides et vérifions si ceux-ci possèdent un seuil d'écoulement. De plus, pour les solutions de polymères, la concentration  $c^*$  est déterminée.

### 5.1 Solutions de Xanthane : fluide rhéofluidifiant

#### 5.1.1 Un polymère rigide : le Xanthane

Nous utilisons des solutions aqueuses diluées et semi-diluées du polymère Xanthane de Aldrich d'une masse moléculaire de  $M_w = 3 * 10^6$  u.m.a.. Le Xanthane est un polysaccharide naturel produit par la fermentation de bactéries (*Xanthomonas campestris*). C'est un polymère rigide qui se présente sous forme de bâton en solution aqueuse. Les solutions sont préparées de la façon suivante : une solution de concentration élevée, généralement de 1000 wppm ("parts per million" en poids, dans la suite wppm sera souvent simplement remplacé par ppm), est préparée et ensuite diluée pour obtenir une solution de concentration plus faible. Pour obtenir la solution de polymère, un tourbillon est créé au milieu d'un flacon rempli d'eau sur un agitateur magnétique et le Xanthane en forme de poudre est ensuite rajouté peu à peu dans le tourbillon. Une solution homogène est obtenue après

quelques heures d'agitation faible. Notons que les solutions de Xanthane se conservent moins d'une semaine.

### 5.1.2 La viscosité non-newtonienne

La viscosité non-newtonienne des solutions de Xanthane est mesurée avec les deux rhéomètres différents (Reologica Stress Tech, Contraves LS30) décrit au paragraphe 4.5, afin de couvrir une large gamme de cisaillements. Sur le rhéomètre Reologica Stress Tech nous utilisons les géométries cône-plan C55 et double gap DG. La figure 5.1 montre la viscosité ainsi obtenue en fonction du cisaillement pour quelques concentrations sélectionnées. On constate que pour les concentrations faibles, la viscosité n'est pas beaucoup

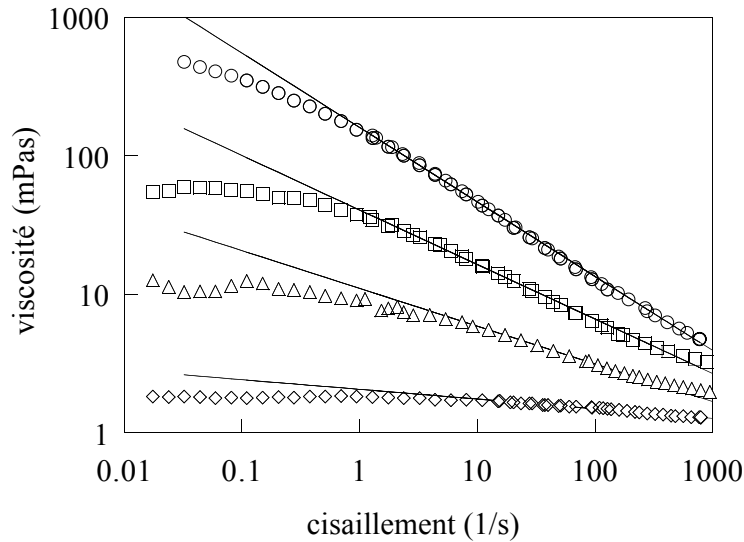


FIG. 5.1: La viscosité en fonction du cisaillement pour des solutions de Xanthane à différentes concentrations, 50 ppm ( $\diamond$ ), 100 ppm ( $\triangle$ ), 500 ppm ( $\square$ ) et 1000 ppm ( $\circ$ ). Les traits représentent les fits du modèle en loi de puissance :  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équ. (2.14)) pour des cisaillements élevés.

modifiée par l'ajout de polymères dans l'eau (elle reste proche de la valeur de celle de l'eau  $\eta_{\text{eau}} = 1$  mPa s) et varie peu avec le cisaillement. Pour les concentrations plus élevées, la viscosité à cisaillements faibles est beaucoup plus élevée que la viscosité de l'eau et décroît avec le cisaillement. En augmentant la concentration des solutions, il est ainsi possible de modifier le caractère rhéofluidifiant des solutions : on va d'un fluide faiblement rhéofluidifiant à faible concentration à un fluide fortement rhéofluidifiant à forte concentration.

Dans une certaine gamme de cisaillement, la viscosité rhéofluidifiante est bien décrite

concentration	$k_1$	$n$	gamme de validité
50	2.06	0.930	$10 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 500 \text{ s}^{-1}$
100	5.23	0.818	$10 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 500 \text{ s}^{-1}$
200	11.04	0.737	$5 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 500 \text{ s}^{-1}$
250	11.04	0.727	$5 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 500 \text{ s}^{-1}$
500	40.62	0.607	$1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 1000 \text{ s}^{-1}$
1000	160.35	0.463	$1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 1000 \text{ s}^{-1}$
1750	511.46	0.326	$1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 1000 \text{ s}^{-1}$
2000	568.09	0.329	$0.1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 1000 \text{ s}^{-1}$
3000	1088.70	0.269	$0.1 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 1000 \text{ s}^{-1}$

TAB. 5.1: Paramètres  $k_1$  et  $n$  du modèle en loi de puissance pour la viscosité  $\eta = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équation (2.14)) et la gamme de validité de ce modèle pour des solutions de Xanthane à différentes concentrations.

par le modèle en loi de puissance de Ostwald de Waele (équation (2.14)) :

$$\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1} \quad (5.1)$$

Les fits des données expérimentales  $\eta(\dot{\gamma})$  avec ce modèle sont également présentés sur la figure 5.1. On constate que pour un fluide fortement rhéofluidifiant, la gamme de cisaillement où le modèle est valable est plus large que pour un fluide faiblement rhéofluidifiant. La valeur de  $n$  ( $0 < n < 1$ ) qu'on appelle aussi exposant du modèle en loi de puissance est une mesure du caractère rhéofluidifiant des solutions.  $n$  est proche de 1 pour des solutions faiblement rhéofluidifiantes et diminue quand le fluide devient plus fortement rhéofluidifiant. Le tableau 5.1 regroupe, pour les solutions de Xanthane de différentes concentrations utilisées dans la suite, les résultats pour les paramètres  $k_1$  et  $n$  déterminés à partir des données expérimentales  $\eta(\dot{\gamma})$  avec le modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$ , ainsi que la gamme de validité de ce modèle. On constate que  $n$  est proche de 1 pour la concentration de 50 ppm et diminue jusqu'à  $n = 0.269$  pour la solution de 3000 ppm. Ceci montre encore une fois que le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente avec leur concentration en Xanthane.

### 5.1.3 La concentration $c^*$

La concentration  $c^*$ , introduite au paragraphe 4.4, est pour les solutions de polymères une mesure de l'importance de l'enchevêtrement des polymères. Nous utilisons la relation  $[\eta] c^* = 1$  (équ. (4.21)) également introduite au paragraphe 4.4 pour déterminer cette

concentration  $c^*$  pour le Xanthane. La viscosité intrinsèque  $[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s} \right)$  (équ. (4.20)) où  $\eta_s$  est la viscosité du solvant et  $\eta_0$  la viscosité à cisaillement nulle, se déduit des mesures de viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  pour des solutions de Xanthane à différentes concentrations.  $\eta_0$  est déterminée pour chaque concentration à l'aide d'un fit des données  $\eta(\dot{\gamma})$  avec le modèle  $\eta(\dot{\gamma}) = \frac{\eta_0}{(1+(\tau\dot{\gamma})^2)^m}$  (équ. (2.15)). Un tel fit est montré sur la figure 5.2 a. Ensuite, la quantité  $\frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s}$  est tracée en fonction de  $c$  (Fig. 5.2 b). Dans le paragraphe 4.4, nous avons montré que cette quantité peut être représentée comme un polynôme en  $c$ . Le coefficient d'ordre zéro de ce polynôme est égal à la viscosité intrinsèque  $[\eta]$ . Ce coefficient est déterminé par un fit polynômial des données  $\frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s}$  qu'on peut également voir sur la figure 5.2 b. Pour les solutions de Xanthane, on trouve  $[\eta] = 0.019$  ce qui mène à  $c^* = 50$  ppm (équ. (4.21)).

Sur la figure 5.1, on voit que les solutions de Xanthane deviennent significativement rhéofluidifiantes pour des concentrations  $c > c^*$ .

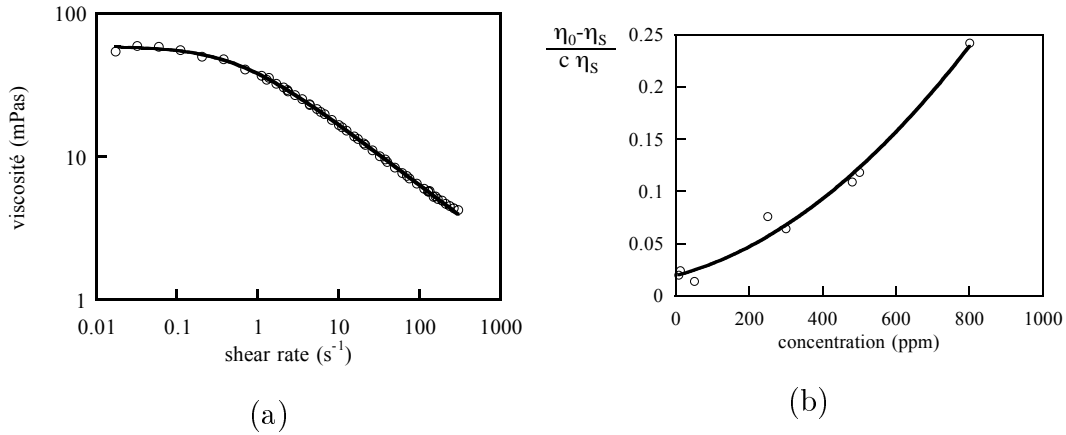


FIG. 5.2: a) La viscosité en fonction du cisaillement ( $\circ$ ) pour une solution de Xanthane de 500 ppm et un fit ( $-$ ) avec le modèle  $\eta(\dot{\gamma}) = \frac{\eta_0}{(1+(\tau\dot{\gamma})^2)^m}$  de l'équation (2.15) qui permet de déterminer  $\eta_0$ . b)  $\frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s}$  ( $\circ$ ) en fonction de la concentration  $c$  en Xanthane des solutions et fit ( $-$ ) avec un polynôme en  $c$  afin d'obtenir la limite  $\lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\eta_0 - \eta_s}{c \eta_s} \right)$  qui correspond à la viscosité intrinsèque  $[\eta]$ .

#### 5.1.4 La contrainte normale

Les valeurs de la contrainte normale  $N_1$  obtenues lors de mesures rhéologiques doivent être corrigées par des effets d'inertie et d'écoulements secondaires introduits au paragraphe 4.2. Nous décrivons la procédure adoptée pour déterminer cette contrainte normale dans nos solutions de polymères diluées en détail au paragraphe 5.2.4 pour les solutions de PEO.

Dans ce paragraphe, nous nous limiterons à la présentation des résultats de contrainte normale en fonction du cisaillement obtenus dans les solutions de Xanthane.

Ces résultats sont représentés sur la figure 5.3. On constate qu'il n'y a pas de contrainte

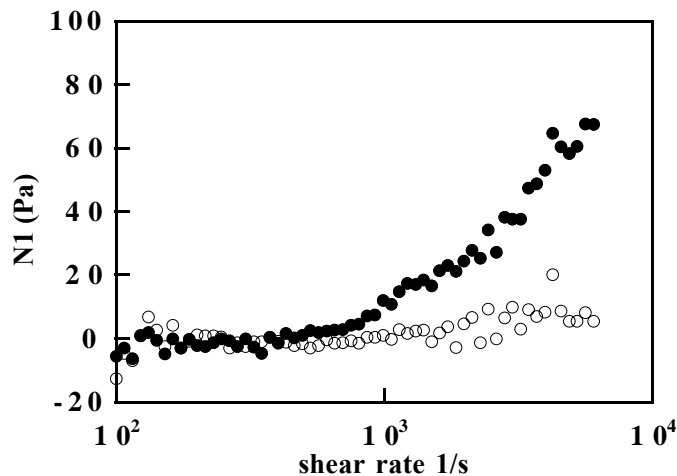


FIG. 5.3: La contrainte normale en fonction du cisaillement pour des solutions de Xanthane de 1000 ppm (○) et 3000 ppm (●). Dans la gamme de cisaillements accessibles ( $100 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 6000 \text{ s}^{-1}$ ), des contraintes normales peuvent être détectées seulement à partir d'une concentration  $c$  de 3000 ppm.

normale détectable à la précision de nos mesures, jusqu'à une concentration de 1000 ppm incluse. Pour une concentration de 3000 ppm, on mesure une faible contrainte normale. Des contraintes normales se manifestent généralement suite à une déformation élastique des chaînes de polymère. Cette déformation est très faible pour le polymère rigide Xanthane. Ceci explique qu'on ne mesure pas de contrainte normale dans les solutions diluées de Xanthane. Par contre, pour des concentrations plus élevées que  $c^*$ , l'interaction entre les polymères peut créer une contrainte normale. Cette interaction, et ainsi la contrainte normale, devient plus importante au fur et à mesure que la concentration augmente. Lors de nos mesures, il est seulement possible de détecter une contrainte normale pour des concentrations  $c \sim 3000 \text{ ppm}$ , ce qui signifie que cet effet n'est pas très prononcé. Ces résultats de contrainte normale  $N_1(\dot{\gamma})$  seront mis en relation avec les contraintes visqueuses  $\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma}$  pour un même cisaillement, dans le résumé concernant les solutions de Xanthane (paragraphe 5.1.5).

### 5.1.5 Résumé concernant les solutions de Xanthane

Dans les solutions de Xanthane, la propriété non-newtonienne dominante est la viscosité non-newtonienne. Sur la figure 5.4, on voit le rapport entre la contrainte normale  $N_1(\dot{\gamma})$  et la contrainte visqueuse  $\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma}$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$ , pour une concentration en Xanthane de 1000 ppm. On constate, qu'à faible cisaillement  $N_1(\dot{\gamma}) / (\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma})$  fluctue autour de zéro et augmente très légèrement pour des  $\dot{\gamma}$  plus élevés, tout en restant inférieur à 1, dans la gamme de cisaillements accessibles ( $100 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 6000 \text{ s}^{-1}$ ). Notons que les valeurs négatives qu'on voit sur la figure 5.4 sont dues à des incertitudes lors de la détermination du zéro de l'appareil de mesure. Pour des concentrations  $c \leq 1000 \text{ ppm}$  (correspondant à la gamme de concentrations utilisées dans la plupart de nos expériences de digitation visqueuse), la contrainte normale peut donc être négligée devant la contrainte visqueuse.

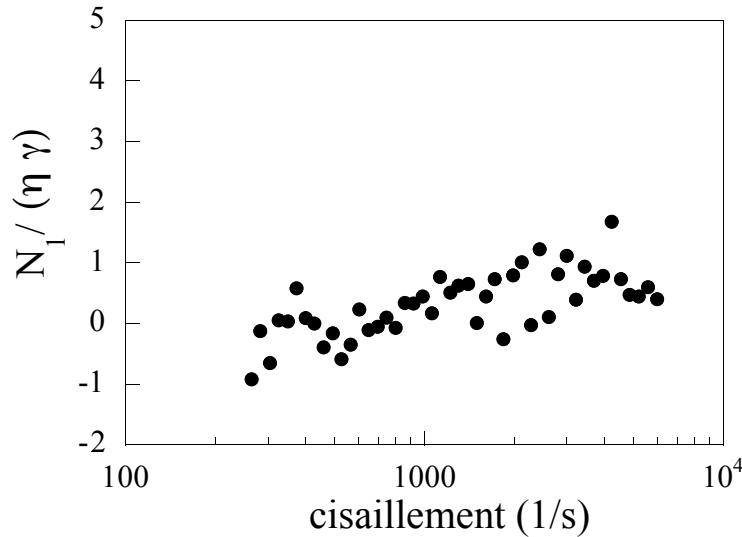


FIG. 5.4: Le rapport entre la contrainte normale et la contrainte visqueuse :  $N_1(\dot{\gamma}) / (\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma})$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de Xanthane de 1000 ppm. On constate, que dans la gamme de cisaillements accessible par nos expériences rhéologiques la contrainte normale est négligeable par rapport à la contrainte visqueuse pour cette solution.

Le caractère rhéofluidifiant des solutions peut être contrôlé par la concentration des solutions. Pour de faibles concentrations, les solutions sont faiblement rhéofluidifiantes et se comportent presque comme des fluides newtoniens. Quand la concentration augmente les solutions deviennent de plus en plus rhéofluidifiantes. Une mesure du caractère rhéofluidifiant des solutions est l'exposant  $n$  du modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1\dot{\gamma}^{n-1}$  (éq. (2.14)) pour la viscosité.  $n$  est proche de 1 pour les fluides faiblement rhéofluidifiants

et devient de plus en plus petit quand le caractère rhéofluidifiant du fluide devient plus important.

## 5.2 Solutions de PEO : effets élastiques

### 5.2.1 Un polymère flexible : le PEO

Nous utilisons le polymère flexible polyéthylèneoxyde (PEO) de Union Carbide. La masse moléculaire du PEO WSR301 est de  $M_w = 4 \cdot 10^6$  u.m.a. et de  $M_w = 2 \cdot 10^6$  u.m.a. pour le PEO WSR N60K. Quand nous ne spécifions pas le type de polymère utilisé, nous faisons dans la suite toujours référence au PEO WSR301. Le PEO WSR N60K ne sera utilisé qu'exceptionnellement.

Les solutions de PEO sont préparées de la même façon que celles de Xanthane (cf paragraphe 5.1.1). Lors de la préparation des solutions de PEO, il faut cependant faire attention à ne pas agiter les solutions trop violemment, car on risque de casser les polymères flexibles. Le PEO se dissout moins facilement dans l'eau que le Xanthane. Il est donc nécessaire d'agiter les solutions pendant plus de temps ( $\sim 5$  heures) avant d'obtenir une solution homogène. Cette solution est ensuite laissée au repos durant 24 heures.

### 5.2.2 La viscosité non-newtonienne

La viscosité non-newtonienne des solutions de PEO est déterminée sur le rhéomètre Reologica Stress Tech en utilisant les géométries cône-plan C55 et double gap DG (cf paragraphe 4.5). Les résultats pour des concentrations de 125 ppm, 250 ppm, 500 ppm et 1000 ppm pour une gamme de cisaillement de  $100 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 6000 \text{ s}^{-1}$  sont représentés sur la figure 5.5. On constate que la viscosité des solutions change à peine avec le cisaillement et peut donc être considérée comme newtonienne. De plus, la viscosité des solutions de PEO reste, même pour les concentrations élevées, très proche de celle de l'eau.

### 5.2.3 La concentration $c^*$

La concentration  $c^*$  est pour les solutions de PEO déduite des mesures de viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$ . Des mesures de  $\eta(\dot{\gamma})$  à bas cisaillement ont été effectuées à cette occasion sur le rhéomètre Contraves LS30 (cf paragraphe 4.5). Ici, nous suivons la même procédure que pour la détermination de  $c^*$  dans les solutions de Xanthane (cf paragraphe 5.1.3). Sur la figure 5.6, on voit  $\frac{\eta - \eta_S}{c\eta}$  en fonction de la concentration  $c$ . La viscosité intrinsèque est déterminée à partir de ces résultats à  $[\eta] = 0.0026$ , ce qui mène à  $c^* = 380$  ppm.



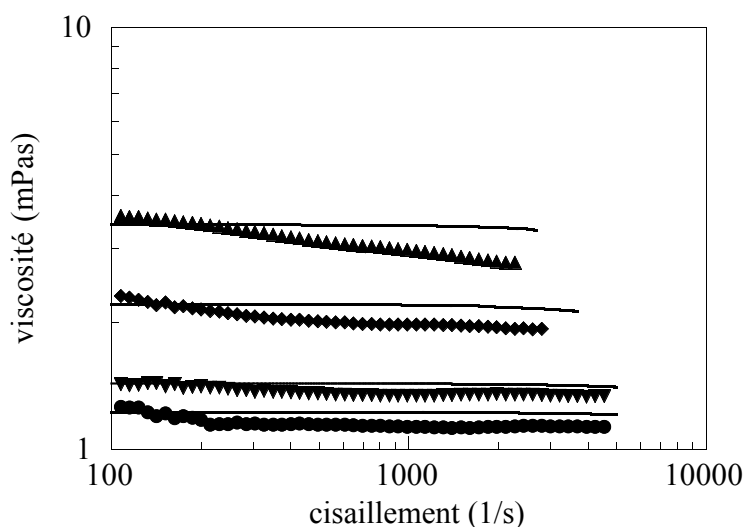


FIG. 5.5: La viscosité en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm (▲), 500 ppm (◆), 250 ppm (▼) et de 125 ppm (●). La viscosité des solutions de PEO ne varie presque pas avec le cisaillement et peut donc en bonne approximation être considérée comme newtonienne. Les traits représentent un fit des données  $\eta(\dot{\gamma})$  avec l'équation (6.1) du modèle FENE (cf chapitre 6).

On constate que  $c^*$  est plus élevée pour les solutions du polymère flexible PEO que pour le polymère rigide Xanthane ( $c^* = 50$  ppm). La concentration  $c^*$  étant proportionnelle à l'inverse du volume effectif occupé par un polymère (cf paragraphe 4.4), ceci signifie que le volume effectif occupé par le polymère Xanthane est plus grand que celui occupé par le polymère flexible PEO. Ceci est en accord avec la remarque faite au paragraphe 4.4 : le volume effectif occupé par un polymère rigide est plus grand que celui d'un polymère flexible pour des longueurs de chaîne comparables.

Par conséquent, la fraction volumique effective  $\phi$  est plus élevée dans les solutions de Xanthane que dans les solutions de PEO, à concentration identique. En utilisant la relation d'Einstein (équ. (4.17)),  $\eta_0 = \eta_s (1 + 2.5\phi + \dots)$  cette différence de fractions volumiques explique que la viscosité à cisaillement nul est, pour une concentration donnée, plus élevée pour le Xanthane que pour le PEO.

#### 5.2.4 La contrainte normale

La détermination de la contrainte normale dans les solutions diluées de polymères impose des conditions de mesures spécifiques. Premièrement, les effets de contrainte normale se manifestent seulement pour des cisaillements suffisamment élevés pour pouvoir étirer

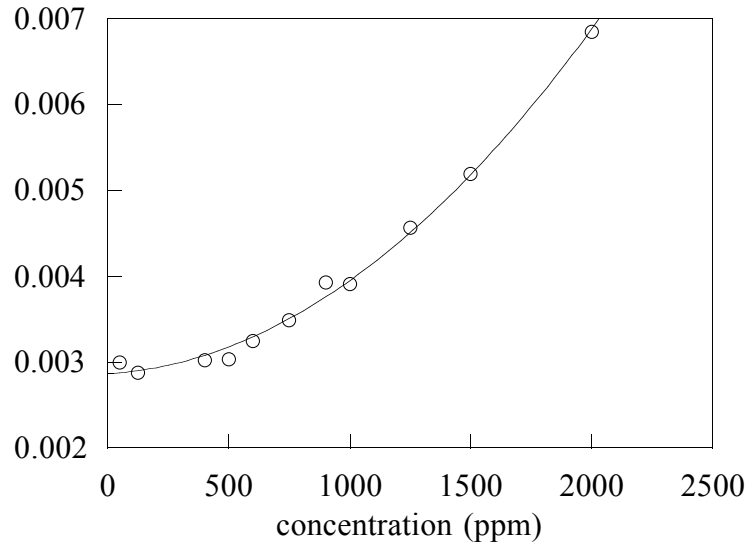


FIG. 5.6:  $\frac{\eta - \eta_s}{c\eta}$  en fonction de la concentration  $c$  pour les solutions de PEO et un fit polynômial permettant de retrouver la limite  $\lim_{c \rightarrow \infty} \left( \frac{\eta - \eta_s}{c\eta} \right)$  qui correspond à la viscosité intrinsèque  $[\eta]$ .

les pelotes de polymères. Ceci demande que l'inverse d'un temps de relaxation typique  $\tau$  du polymère soit égal au cisaillement dans l'écoulement :  $\dot{\gamma} \sim 1/\tau$ . Pour le PEO, cet temps de relaxation  $\tau \sim 1$  ms (cf chapitre 6), et il faut donc atteindre des cisaillements de l'ordre de  $1000 \text{ s}^{-1}$  avant de pouvoir mesurer des contraintes normales significatives dans les solutions de PEO. A cause de l'apparition d'écoulements turbulents, la majorité de géométries de mesures ne permettent pas d'atteindre des cisaillement aussi élevés. Deuxièmement,  $N_1$  est relativement faible pour les solutions diluées ce qui demande des dispositifs de mesures très sensibles.

Pour satisfaire à ces exigences, nous utilisons la géométrie cône-plan C55 d'un rayon  $a$  de 27.5 mm et d'angle  $\Theta_0$  de  $0.5^\circ$ , fabriqué sur mesure pour les mesures de contrainte normale dans les solutions très diluées de polymères. Le grand rayon permet une mesure très sensible de la contrainte normale. Le fait que l'angle soit extrêmement petit permet d'obtenir des cisaillements élevés à basse vitesse de rotation, ce qui limite l'importance d'écoulements secondaires.

Dans le paragraphe 4.2, nous avons expliqué que les résultats de mesures rhéologiques de la contrainte normale  $N_1$  doivent être corrigés par des effets d'inertie et d'écoulements secondaires. Pour les mesures de  $N_1$  dans les solutions de PEO, nous tenons compte de ces corrections en prenant les résultats obtenues pour l'eau pure comme référence. Lors des expériences, l'intervalle entre le cône et le plan est toujours rempli avec la même quantité de fluide. Des éventuels effets de bord se produisent donc toujours de la même

façon et devraient elles aussi être corrigés en prenant l'eau comme référence. Les valeurs de  $N_1$  obtenues pour l'eau pure sont montrées sur la figure 5.7. Les contraintes normales

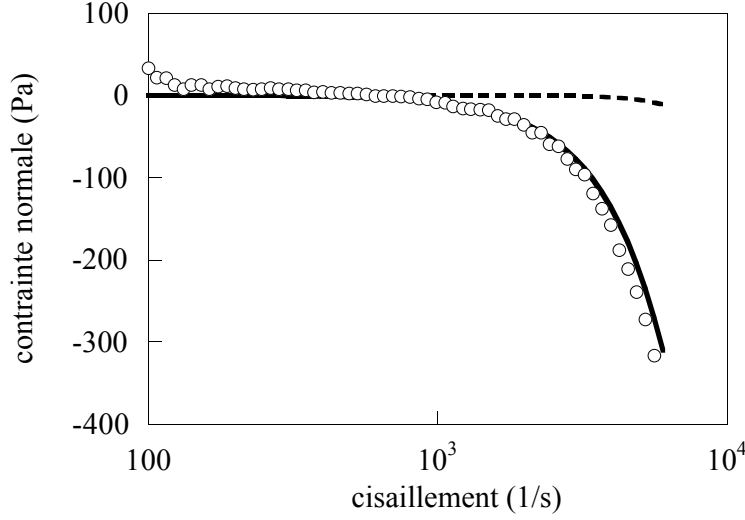


FIG. 5.7:  $N_1$  en fonction du cisaillement pour de l'eau pure ( $\circ$ ) et les solutions pour la contrainte normale découlant de l'équation des forces d'inertie (4.12) (—) et des écoulements secondaires (4.13) (- -).

déoulant des équations pour l'inertie (4.12) et les écoulements secondaires (4.13) dans la géométrie C55 utilisée et pour l'eau ( $\eta = 1$  mPa s et  $\rho = 10^3$  kg/m<sup>3</sup>) sont aussi montrées. Notons qu'il n'y a pas de paramètre ajustable. On constate, que les résultats expérimentaux sont très bien décrits par le terme correctif d'inertie découlant de l'équation (4.12) seul. Les effets dûs aux écoulements secondaires sont en fait négligeables, dû au petite angle d'ouverture du cône  $\Theta_0$ . On peut aussi exclure l'influence d'autres effets comme par exemple un réglage imparfait des parties du système de mesure sur ces résultats.

Comme la viscosité et la densité des solutions de PEO sont quasiment inchangées par rapport à celle de l'eau, on peut supposer que les forces supplémentaires induites par les effets d'inertie et d'écoulements secondaires dans ces solutions de PEO, restent elles aussi identiques à celles présentes dans l'eau pure. Une correction des résultats bruts obtenus pour les solutions de PEO par les résultats de l'eau :

$$N_1 = (N_1)_{\text{brut}} - (N_1)_{\text{eau}} \quad (5.2)$$

devrait donc enlever l'influence de ces forces sur les mesures.

Cette hypothèse est vérifiée par l'utilisation d'une deuxième géométrie C50 ( $a = 25$  mm et  $\Theta_0 = 1^\circ$ ). Les résultats obtenus dans les géométries C50 et C55 (Fig. 5.8) pour une solution de PEO de 1000 ppm corrigés à l'aide de l'équation (5.2) par rapport à l'eau

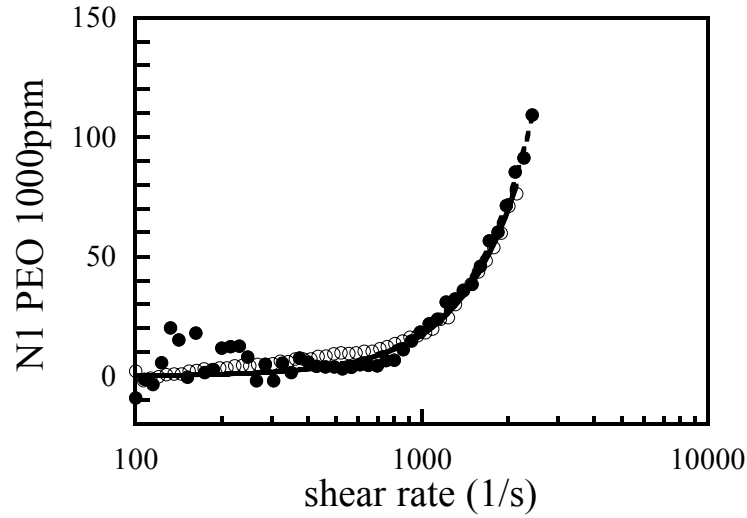


FIG. 5.8: La contrainte normale en fonction du cisaillement pour une solution de PEO de 1000 ppm pour la géométrie de mesure C50 de  $a = 25$  mm et  $\Theta_0 = 1^\circ$  ( $\circ$ ) et C55 de  $a = 27.5$  mm et  $\Theta_0 = 0.5^\circ$  ( $\bullet$ ).

sont en bon accord ce qui indique que les forces supplémentaires d'inertie (4.12) et des écoulements secondaires (4.13) sont en effet identiques pour l'eau et les solutions diluées de PEO. Notons que les mesures dans la géométrie C50 ont été effectuées sur un nouveau rhéomètre Reologica Stress Tech, qui possède un détecteur de forces normales  $F_z$  plus sensible que l'ancien rhéomètre. Ceci explique que les valeurs de  $N_1$  obtenues à bas cisaillement fluctuent moins dans la géométrie C50 que dans la géométrie C55.

Les valeurs de contrainte normale  $N_1$  corrigées pour les solutions de 125 ppm, 250 ppm, 500 ppm et 1000 ppm sont montrés sur la figure 5.9 en fonction du cisaillement. Les résultats sont déterminés avec une précision de 10 Pa. On constate que les contraintes normales sont élevées dans les solutions de PEO. La contrainte normale est proche de zéro à bas cisaillement et commence à augmenter autour d'un certain cisaillement critique. Ce cisaillement semble être un peu plus bas pour les solutions concentrées (1000 ppm et 500 ppm) que pour les solutions moins concentrées (250 ppm et 125 ppm). La contrainte normale devient plus élevée quand la concentration augmente et atteint des valeurs aussi élevées que  $N_1 = 100$  Pa à haut cisaillement pour la solution de 1000 ppm. Pour les concentrations élevées, une instabilité secondaire, probablement d'origine élastique [38], intervient à un cisaillement inférieur à  $6000 \text{ s}^{-1}$  et limite donc la gamme de cisaillement accessible. Cette instabilité se manifeste par un saut de viscosité lors des mesures et est ainsi facilement détectable.

L'existence de contraintes normales élevées dans les solutions de PEO indique aussi une

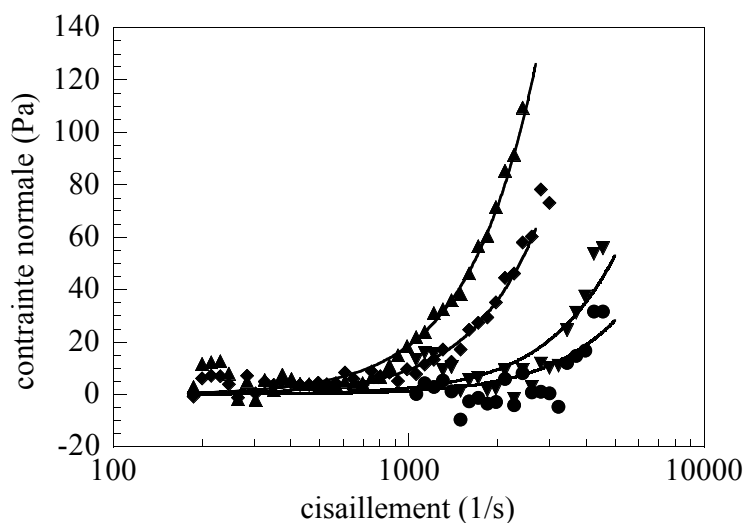


FIG. 5.9: La contrainte normale en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm ( $\blacktriangle$ ), 500 ppm ( $\blacklozenge$ ), 250 ppm ( $\blacktriangledown$ ) et de 125 ppm ( $\bullet$ ). Les traits représentent un fit avec l'équation (6.2) du modèle FENE (cf chapitre 6)

viscosité élongationnelle élevée, les deux phénomènes ayant la même origine (cf chapitre 2). Le chapitre 6 est consacré à la détermination de cette viscosité élongationnelle.

### 5.2.5 Résumé concernant les solutions de PEO

Le polymère polyéthylèneoxyde (PEO) est un polymère flexible. On s'attend donc à des effets élastiques importants dans ces solutions.

On observe en effet des contraintes normales  $N_1(\dot{\gamma})$  élevées, qui sont comparées aux contraintes visqueuses  $\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma}$  pour un même cisaillement  $\dot{\gamma}$  sur la figure 5.10. On constate que  $N_1(\dot{\gamma}) / (\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma})$  est proche de zéro pour de faibles cisaillements et augmente fortement à mesure que le cisaillement augmente. Pour  $\dot{\gamma} = 3000 \text{ s}^{-1}$ , la contrainte normale est déjà 15 fois plus élevée que la contrainte visqueuse et représente donc la propriété non-newtonienne dominante. Ce résultat est très différent de celui observé pour une solution du polymère rigide (Xanthane) à la même concentration, où la contrainte normale reste inférieure à la contrainte visqueuse pour des cisaillements aussi élevés que  $\dot{\gamma} = 6000 \text{ s}^{-1}$ . De plus, la viscosité ne dépend presque pas du cisaillement pour les solutions de PEO et peut être considérée comme constante et donc newtonienne.

L'existence de contraintes normales élevées dans les solutions de PEO indique aussi une viscosité élongationnelle élevée. Ceci est vérifié expérimentalement au chapitre 6 qui est consacré à la détermination de cette viscosité élongationnelle.

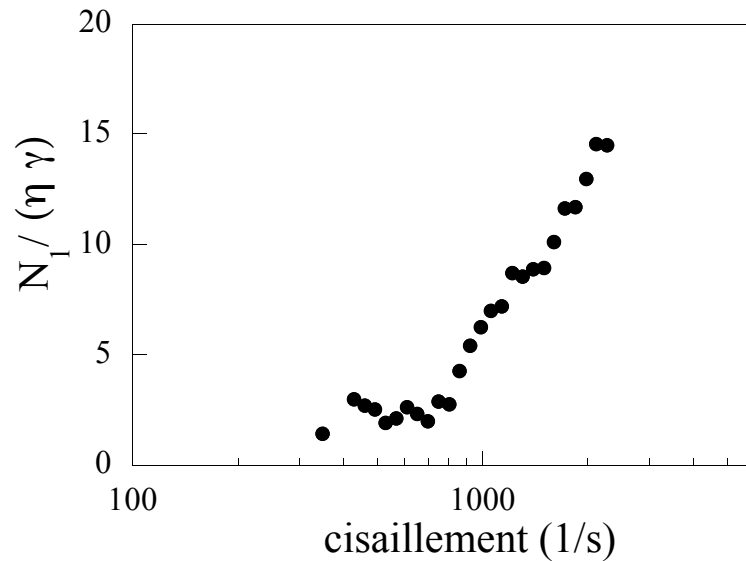


FIG. 5.10: *Le rapport entre la contrainte normale et la contrainte visqueuse :  $N_1(\dot{\gamma}) / (\eta(\dot{\gamma}) \dot{\gamma})$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de PEO de 1000 ppm. On constate, que pour des cisaillements un peu plus élevés ( $\dot{\gamma} > 1000 \text{ s}^{-1}$ ) la contrainte normale domine sur la contrainte visqueuse.*

## 5.3 Le gel et la mousse : fluide à seuil

### 5.3.1 Gel de polymères

Pour des concentrations en polymère plus élevées on observe la formation de gels. Nous utilisons ici un gel coiffant commercial : Miss Helen blue, qui est constitué des polymères PVP (30%) et PEG 40. Dans la suite, nous allons caractériser le comportement rhéologique de ce fluide par deux techniques différentes adaptées à la détermination d'un seuil d'écoulement : le plan incliné et le rhéomètre. Ces techniques sont décrites au paragraphe 4.3. La contrainte normale sera également mesurée.

### 5.3.2 Le seuil d'écoulement pour le gel

Dans l'expérience du plan incliné (voir fig. 5.11) une grande quantité de gel (environ 1kg), afin d'éviter des effets de bords, est déposée sur une planche inclinée d'un angle  $\beta = 22^\circ$  dont la surface est rugueuse afin d'éviter le glissement du gel au contact de la planche. Sous l'influence de la gravité, le fluide commence à s'écouler et l'épaisseur de la couche de fluide diminue à fur et à mesure de l'expérience jusqu'à ce que le mouvement s'arrête à une épaisseur de couche  $h_0 = 0.9 \text{ cm}$  pour le gel. Pour des épaisseurs  $h$  inférieures à cette

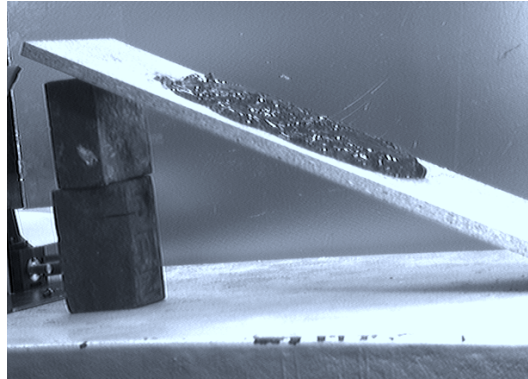


FIG. 5.11: Gel sur planche inclinée. Une grande quantité de gel est déposée sur une planche (longueur 1 m, largeur 30 cm) inclinée d'un angle  $\beta = 22^\circ$ . Sous l'influence de la gravité, le fluide commence à s'écouler et l'épaisseur de la couche de fluide diminue au cours du temps, jusqu'à ce que le mouvement s'arrête à une épaisseur de couche  $h_0 = 0.9$ . La contrainte tangentielle maximale :  $\tau = h_0 g \rho \sin \beta$  (équ. 4.15) est égale à  $\tau_c$  et permet ainsi de déterminer la contrainte seuil.

épaisseur  $h_0$ , la contrainte tangentielle maximale exercée sur le fluide :  $\tau = h g \rho \sin \beta$  (équ. 4.15) est inférieure à la contrainte critique  $\tau_c$ , ce qui explique qu'il n'y a plus d'écoulement possible. En supposant que la densité du gel est identique à celle de l'eau, on obtient d'après cette relation pour la contrainte critique  $\tau_c = 33$  Pa.

Cette expérience démontre qualitativement l'existence d'un seuil d'écoulement pour le gel utilisé. La valeur déterminée de  $\tau_c = 33$  Pa est par contre moins fiable. Des sources d'erreurs possibles sont par exemple le fait que l'épaisseur de la couche n'est pas parfaitement homogène, la difficulté de déterminer si l'équilibre est totalement atteint et le séchage éventuel du fluide utilisé au cours de l'expérience. Le résultat obtenu pour  $\tau_c$  lors de l'expérience du plan incliné doit donc plutôt être considéré comme une indication de l'ordre de grandeur de la contrainte seuil et non pas comme une détermination exacte de sa valeur. Celle-ci va être déterminée par la suite à l'aide du rhéomètre.

Une autre possibilité pour indiquer l'existence d'un seuil d'écoulement est l'observation de bulles d'air qui restent figées dans le gel. Les bulles exercent une contrainte  $\tau = F_A/A = F_A/(r^2\pi)$  sur le gel, où  $r$  est le rayon des bulles qu'on suppose sphériques et  $F_A$  est la pousse d'Archimède  $F_A = m g = \frac{4}{3}\pi r^3 \rho g$ . Si cette contrainte n'est pas suffisamment élevée pour dépasser le seuil d'écoulement, les bulles ne peuvent pas sortir du fluide. Ceci mène à une taille maximale de bulles en fonction du seuil qui restent figées dans le gel.

Pour déterminer la valeur exacte du seuil à l'aide du rhéomètre, nous utilisons la géométrie cône-plan C55. La détermination d'un seuil d'écoulement se faisant dans le

fluide utilisé	$\tau_c$ Pa	$k_1$ Pa s <sup>-n</sup>	$n$
gel	16	38	0.38
mousse à raser avec papier de verre	150	19	0.50
mousse à raser sans papier de verre	1.9	5.2	0.6

TAB. 5.2: Paramètres  $n$ ,  $\tau_c$  et  $k_1$  déterminés par un fit des courbes  $\tau(\dot{\gamma})$  obtenues en rhéologie (Fig. 5.12) avec le modèle de Herschel-Bulkley (équ. (2.17)).

rhéomètre généralement par des mesures à contrainte imposée (cf paragraphe 4.3), nous imposons des valeurs croissantes de contrainte, mesurons  $\dot{\gamma}(t)$  et déterminons ainsi la limite au delà de laquelle un écoulement est obtenu. Pour le gel, lorsque la contrainte appliquée est inférieure à  $\tau_c$ , on observe des fluctuations de cisaillement extrêmement faibles ( $\dot{\gamma} < 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ ). Ces fluctuations sont dues à la réponse élastique du fluide et l'incertitude de mesure de l'appareil dans ce domaine. L'amplitude de ces fluctuations diminue avec le temps. Pour des contraintes appliquées proche de  $\tau_c$ , on observe des fluctuations de cisaillement autour de valeurs un peu plus élevées ( $10^{-3} \text{ s}^{-1} \leq \dot{\gamma} \leq 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) qui se stabilisent sur une valeur constante au cours du temps. Au delà du seuil de contrainte, le cisaillement atteint des valeurs stables plus élevées ( $\dot{\gamma} > 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ ). Pour éviter des effets de bord, les valeurs de la contrainte appliquée ne varient pas de façon continue, mais des valeurs élevées et faibles sont alternées. Cette technique permet d'estimer assez rapidement la valeur du seuil de contrainte. Pour déterminer  $\tau(\dot{\gamma})$  pour une large gamme de cisaillements nous effectuons cependant des expériences à vitesse imposée. La partie à bas cisaillement de la courbe 5.12 à ainsi été obtenue en travaillant à contrainte imposée tandis que la suite de la courbe est obtenue en travaillant à cisaillement imposé. La contrainte seuil  $\tau_c$  découle d'un fit des données expérimentales avec le modèle de Herschel-Bulkley  $\tau = \tau_c + k_1 \dot{\gamma}^n$  (équation (2.17)) :  $\tau_c = 16 \pm 2 \text{ Pa}$ . On constate qu'il y a un facteur deux entre le seuil de contrainte  $\tau_c = 16 \text{ Pa}$  obtenu lors des expériences dans le rhéomètre et  $\tau_c = 33 \text{ Pa}$  déterminé dans l'expérience du plan incliné. La précision de cette deuxième méthode est donc en effet faible. Les résultats du fit avec le modèle de Herschel-Bulkley (équation (2.17)) sont regroupés dans le tableau 5.2.

### 5.3.3 La viscosité non-newtonienne

La viscosité non-newtonienne du gel  $\eta = \tau/\dot{\gamma}$  découle des mesures  $\tau(\dot{\gamma})$  présentées au paragraphe précédent. Dans le cadre du modèle de Herschel-Bulkley, la viscosité d'un



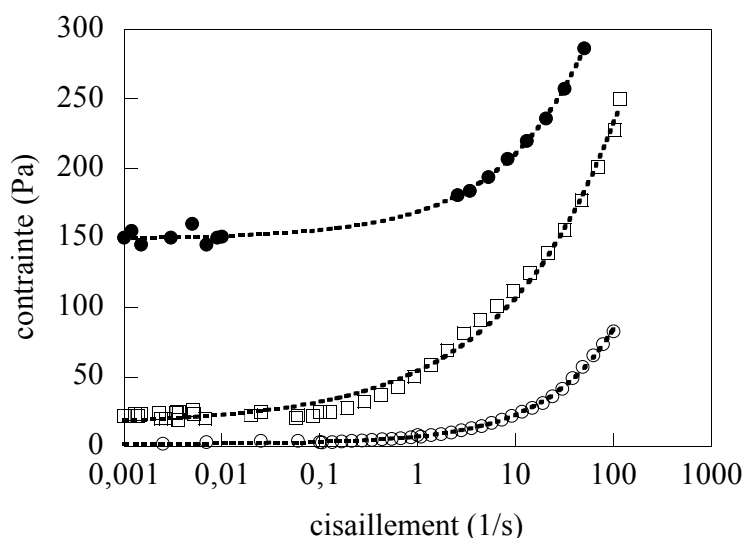


FIG. 5.12: Contrainte  $\tau$  en fonction du cisaillement d'après les mesures rhéologiques pour le gel ( $\square$ ), la mousse sans papier de verre ( $\circ$ ) et la mousse avec papier de verre ( $\bullet$ ) et fit (- - -) avec le modèle de Herschel-Bulkley (équ. (2.17)).

fluide à seuil s'écrit :

$$\eta(\dot{\gamma}) = \frac{\tau_c}{\dot{\gamma}} + k_1 \dot{\gamma}^{n-1} \quad (5.3)$$

A très faible cisaillement, la contrainte seuil domine le comportement du fluide. Pour des cisaillements un peu plus élevés (pour le gel,  $\dot{\gamma} > 1 \text{ s}^{-1}$ ), le terme visqueux  $k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  domine rapidement sur la contrainte seuil. Dans cette limite, le modèle de Herschel-Bulkley devient identique au modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équ. (2.14)) : le fluide se comporte comme un fluide rhéofluidifiant. La valeur  $n = 0.38$  déterminée au paragraphe précédent indique que le gel est un fluide fortement rhéofluidifiant dans ce régime. Notons que la valeur de  $k_1 = 38 \text{ Pa s}^n$  est presque deux ordres de grandeur plus grande que les valeurs obtenues pour les solutions de Xanthane concentrées. La viscosité du gel est donc très élevée par rapport à celle des solutions de Xanthane.

### 5.3.4 La contrainte normale

Sur la figure 5.13, on voit la contrainte normale en fonction du cisaillement pour le gel. Les expériences ont été effectuées dans la géométrie C55. On constate que, pour des cisaillements élevés ( $\dot{\gamma} \sim 6000 \text{ s}^{-1}$ ), la contrainte normale atteint des valeurs de l'ordre de  $N_1 = 1000 \text{ Pa}$ . Ces résultats pour le gel sont comparés aux contraintes visqueuses dans le résumé concernant les fluides à seuil (paragraphe 5.3.9).

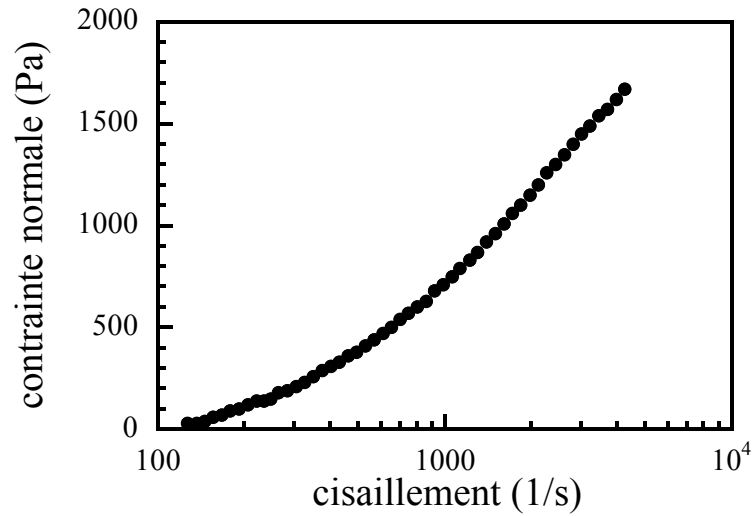


FIG. 5.13: *La contrainte normale en fonction du cisaillement pour le gel.*

### 5.3.5 La mousse

Nous utilisons une mousse de rasage commerciale : Gillette Foamy Regular. Dans la suite, nous allons déterminer le seuil d'écoulement de cette mousse ainsi que la contrainte normale.

### 5.3.6 Le seuil d'écoulement pour la mousse

L'expérience du plan incliné pour la mesure d'un seuil d'écoulement n'est pas adaptée à la mousse car celle-ci se dégrade pendant la longue durée de l'expérience. Nous entreprenons donc uniquement des expériences dans le rhéomètre. Ces expériences sont faites de la même manière que pour le gel (cf paragraphe 5.3.2). Bien que l'expérience de tous les jours, que des quantités pas trop élevées de la mousse à raser supportent leur propre poids, indiquent que la mousse est un fluide à seuil, on ne détecte pas de seuil d'écoulement significatif (Fig. 5.12) lors de l'expérience avec le rhéomètre. Ce résultat varie considérablement si on refait l'expérience en collant du papier de verre sur la géométrie de mesure. Nous pouvons faire ceci seulement pour une géométrie de plan-plan. Nous utilisons ici la géométrie P40 (cf paragraphe 4.5) d'un rayon  $a = 20$  mm. Ce traitement rend les surfaces de la géométrie rugueuses et supprime ainsi un éventuel glissement du liquide sur les parois. Sous ces conditions, on détecte un seuil de contrainte très élevé de  $\tau_c = 150$  Pa (cf tableau 5.2 et Fig. 5.12) qui découle comme auparavant d'un fit des données  $\sigma(\dot{\gamma})$  avec le modèle Herschel-Bulkley (équation 2.17. Ceci indique que la mousse est effectivement un fluide à seuil. Cette caractéristique du fluide est masquée lors de

l'utilisation de surfaces lisses qui permettent le glissement de la mousse sur les parois.

Notons que les mesures rhéologiques dans la mousse sont nettement plus délicates que dans le gel. Seule la détermination du seuil à contrainte imposée ne pose pas de problème. Lors des mesures à vitesse imposée la périphérie de l'échantillon initialement verticale se déforme vers l'intérieur du matériau. Ce phénomène appelé creusement a été discuté au paragraphe 4.3.2. Pour obtenir la contrainte visqueuse  $\tau_{\text{réel}}$  (cf équ. (4.16)) pour la géométrie cône-plan, la contrainte déduite des mesures ( $\tau_{\text{app}}$ ) doit être corrigée par :

$$\tau_{\text{réel}} = \left( \frac{a}{a - e} \right)^3 \tau_{\text{app}}. \quad (5.4)$$

où la profondeur du creux formée par rapport à la surface initiale est désignée par  $e$  et  $a$  est le rayon des disques de la géométrie de mesure. Dans le cas d'expériences rhéologiques sur la mousse, ce creusement varie avec le cisaillement et la durée de l'expérience. Nous avons donc estimé la profondeur du creusement variant de 0.5 mm à 2 mm à plusieurs reprises lors de l'expérience. Les résultats obtenus pour  $\tau_{\text{app}}$  sont ensuite corrigés pour le creusement correspondant à l'aide de l'équation (5.4). Pour des cisaillements faibles, il nous était impossible d'obtenir des résultats par des mesures à vitesse imposée car de fortes fluctuations se produisaient.

### 5.3.7 La viscosité non-newtonienne

Comme nous l'avons montré pour le gel (paragraphe 5.3.3), les fluides à seuil se comportent à cisaillement élevé comme des fluides rhéofluidifiants. Ceci est également vérifié dans la mousse. Les paramètres  $k_1$  et  $n$  caractérisant le comportement visqueux découlent d'un fit des données  $\sigma(\dot{\gamma})$  avec le modèle de Herschel-Bulkley (équation 2.17) et se trouvent pour la mousse dans le tableau 5.2.

### 5.3.8 La contrainte normale

Sur la figure 5.14, on voit la contrainte normale en fonction du cisaillement pour la mousse. Les mesures ont été effectuées de nouveau en collant du papier de verre sur les surfaces de la géométrie plan-plan P40 que nous avons aussi utilisée pour les mesures de la contrainte visqueuse dans la mousse. Cette géométrie plan-plan ne permet pas d'aller à des cisaillements supérieurs à  $\dot{\gamma} = 400 \text{ s}^{-1}$ . Notons que les plateaux observés sont dûs à l'appareil de mesure et ne représentent pas une propriété de la mousse. Les résultats pour la contrainte normale seront comparés à la contrainte visqueuse au même cisaillement dans le résumé concernant les fluides à seuil (paragraphe 5.3.9) ci-dessous.

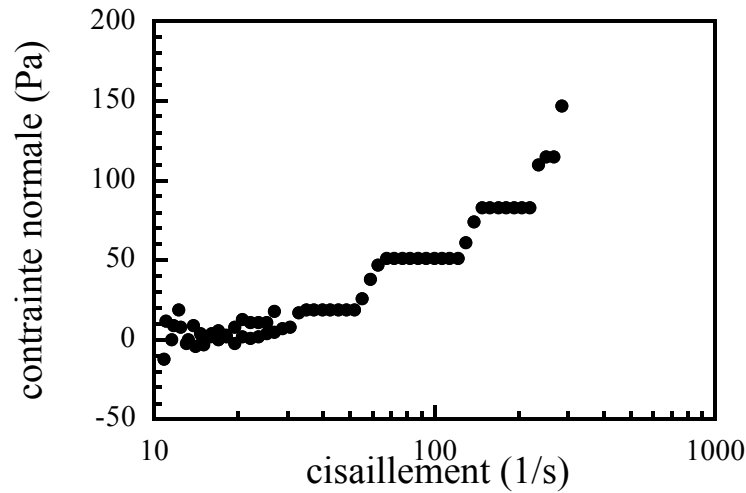


FIG. 5.14: La contrainte normale en fonction du cisaillement pour la mousse.

### 5.3.9 Résumé pour le gel et la mousse

Nous avons montré par l'expérience de la planche inclinée lors de laquelle le gel forme un dépôt d'épaisseur significatif sur une pente non nulle, que ce dernier est un fluide à seuil. Des expériences dans le rhéomètre à contrainte imposée permettent de déterminer la contrainte seuil à  $\tau_c = 16$  Pa pour le gel. Il faut dépasser cette contrainte pour mettre le fluide en mouvement. Pour des contraintes plus élevées que  $\tau_c$ , nous avons montré que le gel se comporte comme un fluide fortement rhéofluidifiant. Nous avons aussi déterminé la contrainte normale pour le gel. Celle-ci est comparée à la contrainte visqueuse pour un même cisaillement sur la figure 5.15 (a). On constate qu'à faible cisaillement  $N_1(\dot{\gamma})$  peut être négligée devant  $\eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma}$ . Pour des cisaillements plus élevés ( $\dot{\gamma} > 1000$  s<sup>-1</sup>), la contrainte normale devient du même ordre de grandeur que la contrainte visqueuse.

Lors d'expériences similaires dans la mousse, on ne détecte pas de seuil d'écoulement significatif. Ce résultat varie considérablement si du papier de verre est collé sur les surfaces de la géométrie de mesure, afin de rendre ces surfaces, initialement lisses, rugueuses. Sous ces conditions, on détecte un seuil de contrainte très élevé de  $\tau = 150$  Pa. Cette observation indique que la mousse est également un fluide à seuil, mais que cette caractéristique du fluide est masquée par le glissement de la mousse sur les surfaces lisses. Ces expériences indiquent que les conditions aux bords ont une grande influence sur le comportement des fluides à seuil. Comme pour le gel, la mousse se comporte pour des contraintes plus élevées que  $\tau_c$  (qui est proche de zéro pour les surfaces lisses) comme un fluide rhéofluidifiant. Les mesures de la contrainte normale  $N_1(\dot{\gamma})$  sont comparées aux contraintes visqueuses sur la figure 5.15 b. On constate que celle-ci est faible devant la contrainte visqueuse dans la

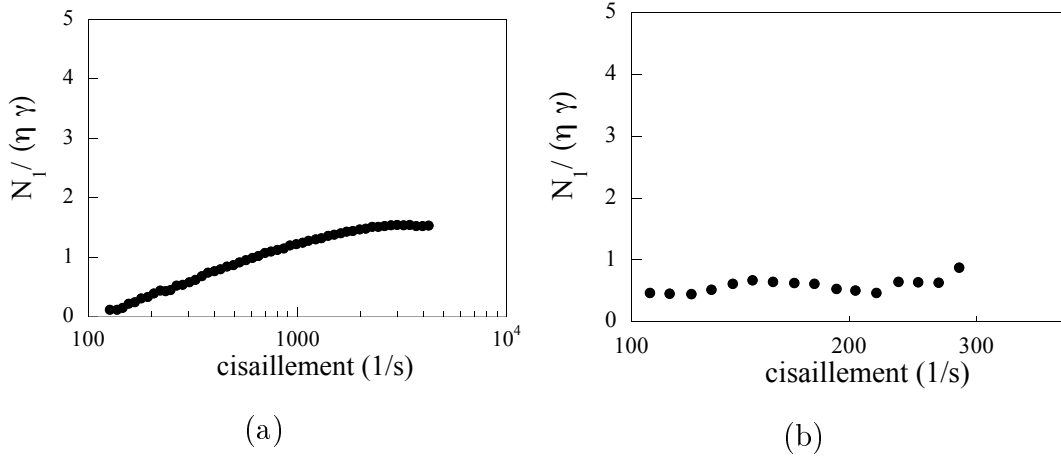


FIG. 5.15: Le rapport entre la contrainte normale et la contrainte visqueuse :  $N_1(\dot{\gamma}) / (\eta(\dot{\gamma}) \dot{\gamma})$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour a) le gel et b) la mousse. On constate, qu'à faible cisaillement la contrainte normale peut être négligée devant la contrainte visqueuse dans les deux cas. Pour le gel, la contrainte normale devient du même ordre de grandeur que la contrainte visqueuse à cisaillement élevé ( $\dot{\gamma} > 1000 \text{ s}^{-1}$ .)

gamme de cisaillements qui nous est accessible par nos mesures ( $100 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 400 \text{ s}^{-1}$ ).

## 5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons déterminé les propriétés non-newtoniennes des fluides utilisés dans la suite dans les expériences de digitation visqueuse. Nous avons montré que les fluides choisis ne possèdent, dans une certaine gamme de cisaillements, chacun une propriété non-newtonienne dominante, de façon que les autres peuvent être négligées.

Les solutions du polymère rigide sont des fluides rhéofluidifiants, dont le caractère rhéofluidifiant augmente avec la concentration des solutions. Les solutions du polymère flexible PEO montrent des effets élastiques, notamment une contrainte normale élevée. Cette contrainte normale devient rapidement plus élevée que les contraintes visqueuses typiquement observées dans ces solutions. Le gel et la mousse représentent des fluides à seuil avec une contrainte seuil  $\tau_c$  caractéristique. Pour des contraintes plus élevées que  $\tau_c$ , ces fluides se comportent comme de fluides fortement rhéofluidifiants. Notons que le caractère de fluide à seuil de la mousse peut être masqué par du glissement sur les parois.

Le choix de ces fluides nous permet donc d'étudier séparément l'effet sur l'instabilité de Saffman-Taylor de ces propriétés non-newtoniennes qui sont : une viscosité non-newtonienne, des effets élastiques et une contrainte seuil. Ces propriétés sont parmi les plus importantes. Cette étude sera présentée dans la troisième partie de cette thèse.

# Chapitre 6

## La viscosité élongationnelle

Dans le chapitre précédent (paragraphe 5.2), nous avons montré que les solutions de PEO présentent des contraintes normales importantes. La manifestation de ces contraintes normales est liée à la déformation des chaînes flexibles de polymères lors d'un cisaillement et est d'autant plus importante que les chaînes sont flexibles. Le fait qu'on mesure des contraintes normales élevées dans les solutions de PEO indique ainsi une grande flexibilité des chaînes. Cette flexibilité provoque une résistance à des écoulements élongationnels qu'on appelle viscosité élongationnelle et qui a été introduite au chapitre 2. Cette viscosité est responsable de nombreux effets observés dans des solutions de polymères, comme par exemple la réduction de la traînée turbulente. En turbulence, une solution de PEO de seulement 50 ppm, réduit la dissipation jusqu'à 50 % par rapport à celle observée dans de l'eau pure [40].

Il s'avère cependant très difficile de mesurer cette viscosité élongationnelle surtout pour des solutions de polymères diluées (voir par exemple [42]). Dans ce chapitre, nous déterminons la viscosité élongationnelle pour les solutions de PEO de deux façons différentes. Premièrement, nous la déduisons des mesures de la contrainte normale  $N_1$ . Il semble naturel de déterminer  $\eta_e$  à partir de ces mesures de  $N_1$  puisque les deux phénomènes ont la même origine physique : l'étirement des chaînes de polymères par l'écoulement. Pour cela, on a besoin d'une équation constitutive qui décrit la réponse d'une solution de polymères à des déformations arbitraires. Une telle équation constitutive contient généralement des paramètres ajustables. Nous déterminons ces paramètres, pour les solutions de polymères spécifiques que nous utilisons, de la façon suivante : l'équation constitutive est résolue pour des écoulements standards de cisaillement, ce qui mène à des expressions analytiques pour la contrainte normale et la viscosité. Ensuite, nous réalisons un fit des mesures rhéologiques de  $N_1(\dot{\gamma})$  et  $\eta(\dot{\gamma})$  (5.2) avec ces expressions et déterminons ainsi les paramètres ajustables pour les solutions de PEO utilisées. Il est maintenant possible de résoudre l'équation con-

stitutive également pour un écoulement élongationnel et, en connaissant les paramètres ajustables pour les solutions de PEO, on obtient une solution pour la viscosité élongationnelle. Deuxièmement, la viscosité élongationnelle est mesurée dans un rhéomètre élongationnel à jets opposés. Nous allons ensuite comparer les résultats obtenus par ces deux méthodes. Ces résultats sont aussi présentés dans Lindner *et al.* [58].

## 6.1 Les modèles décrivant les solutions de polymères

Dans ce paragraphe, nous allons introduire deux modèles moléculaires pour des solutions de polymères qui permettent d'obtenir une équation constitutive pour celles-ci : le modèle FENE et le modèle d'haltère newtonien. Dans ces modèles, le polymère est représenté comme un haltère qui consiste en deux poids connectés par un ressort pouvant être étiré lors de l'écoulement.

### 6.1.1 Le modèle FENE

Le modèle le plus réaliste des modèles d'haltère est le modèle FENE [9, 10]. FENE signifie "Finite Extendibility Non-linear Elasticity". Le ressort peut seulement être étiré d'une quantité finie et par conséquent l'élasticité de celui n'est pas hookéenne. Ce modèle est bien adapté à des solutions de polymères diluées et semi-diluées [88, 53]. Nous présentons ici le modèle FENE-P dans lequel on moyenne sur toutes les configurations des polymères [9, 10].

Dû à la complexité du modèle et les difficultés de la mécanique statistique hors équilibre on peut seulement obtenir une équation constitutive approximative dans le cadre du modèle FENE. Les solutions de cette équation constitutive pour les écoulements stationnaires de cisaillement et d'élongation seront présentées dans la suite.

#### Cisaillement

La solution de l'équation constitutive du modèle FENE en cisaillement pour la viscosité est [9] :

$$\eta = \eta_s + 6 \dot{\gamma}^{-1} n k_B T \sqrt{1 - \alpha b} \sin(1/3 \operatorname{arcsinh}(q p^{-2/3})) \quad (6.1)$$

où  $\eta_s$  est la viscosité du solvant,  $n$  la densité en nombre de polymères et  $k_B T$  l'énergie thermique,  $\alpha = \frac{2}{b(b+2)}$ ,  $p = \frac{b}{54(1-\alpha b)} + \frac{1}{18}$  et  $q = \frac{b\dot{\gamma}\tau}{108(1-\alpha b)}$ .

La contrainte normale est donnée par [9] :

$$N_1 = 2p(1 - \alpha b) n k_B T [6 \sinh(1/3 \operatorname{arcsinh}(q p^{-3/2}))]^2 \quad (6.2)$$

On obtient donc deux équations pour l'évolution de  $\eta$  et  $N_1$  en fonction du cisaillement  $\dot{\gamma}$  contenant seulement deux paramètres ajustables : un temps de relaxation  $\tau$  et une amplitude  $b$ , qui correspond à la longueur maximale des chaînes au carré, ce qui est une mesure de la flexibilité des chaînes.

### Elongation

Une expression analytique pour la viscosité élongationnelle peut être obtenue dans le modèle FENE comme une expression qui est asymptotiquement valable à des taux d'élongation élevés et un développement pour des taux d'élongation faibles [9]. Les deux résultats sont interpolés à la limite de la validité de l'expansion :  $\dot{\epsilon} \approx 1/(2\tau)$ . Des calculs numériques valident cette procédure [95].

Pour des taux d'élongation faibles, on obtient [9] :

$$\eta_e = 3\eta_s + 3bnk_B T \left( \frac{\tau}{b+5} \right) \left[ 1 + \left( \frac{b}{b+7} \right) \dot{\epsilon}\tau + f(b) (\dot{\epsilon}\tau)^2 \right] \quad (6.3)$$

où  $f(b) = \frac{3b^2(b+3)}{(b+5)(b+7)(b+9)}$ .

Pour des taux d'élongation élevés on obtient [9] :

$$\eta_e = 3\eta_s + 2bnk_B T\tau \left[ 1 - \left( \frac{b+3}{2b\dot{\epsilon}\tau} \right) \right] \quad (6.4)$$

#### 6.1.2 Le modèle Oldroyd-B

Les équations du modèle FENE étant très complexes il est utile de les comparer à un modèle plus simple. Un tel modèle est par exemple le "2nd order fluid model" ou modèle de Oldroyd-B. Ce modèle tient compte des écarts faibles par rapport au comportement newtonien et est ainsi valable pour des cisaillements ou des taux d'élongation pas trop élevés.

Le modèle Oldroyd-B est équivalent à un modèle d'haltère où un étirement infini des ressorts est permis. L'élasticité des ressorts est donc hookéenne, et le modèle s'appelle modèle d'haltère hookéen ("hookean dumbbell model"). Cet étirement infini n'est bien sûr pas physique et limite de nouveau le domaine de validité de ce modèle à des cisaillements ou des taux d'élongation faibles.

Dans le cadre du modèle d'haltère hookéen, il est possible d'obtenir une expression exacte de l'équation constitutive [9] :

$$\boldsymbol{\tau}_p + \tau \boldsymbol{\tau}_p(\mathbf{1}) = -nk_B T \tau \mathbf{D} \quad (6.5)$$



où  $\boldsymbol{\tau}_p$  est la contribution au tenseur des contraintes (cf paragraphe 2.1.2) dû aux polymères,  $\boldsymbol{\tau}_p(\mathbf{1})_{ij} = -\sum_n \frac{\partial v_i}{\partial x_n} \tau_{p,nj} + \tau_{p,in} \frac{\partial v_j}{\partial x_n}$ ,  $\mathbf{D}$  est le tenseur de déformation (équ. (2.4)),  $n$  la densité en nombre de polymères et  $k_B T$  l'énergie thermique. Notons que le modèle d'haltère hookéen ne contient qu'un seul paramètre ajustable, le temps de relaxation  $\tau$ . Dans la suite, nous présentons les solutions de cette équation constitutive (équ. (6.5)) pour les écoulements standards de cisaillement et d'élongation.

### Cisaillement

Les solutions du modèle d'haltère hookéen pour des écoulements de cisaillement sont particulièrement simples : une viscosité constante et une contrainte normale quadratique en  $\dot{\gamma}$ . Pour la viscosité on obtient [9] :

$$\eta = \eta_s + n k_B T \tau \quad (6.6)$$

La contrainte normale est donnée par [9] :

$$N_1 = \Psi_1 \dot{\gamma}^2 = 2 n k_B T \tau^2 \dot{\gamma}^2 \quad (6.7)$$

Notons encore une fois que ces équations sont identiques à celles du modèle Oldroyd-B. Un développement des équations du modèle FENE en  $\dot{\gamma}$  jusqu'au premier terme non nul montre que dans cette limite de faible cisaillement, on trouve pour le modèle FENE également une viscosité constante et une contrainte normale quadratique en  $\dot{\gamma}$ , qui sont données par :

$$\begin{aligned} \eta &= \eta_s + n k_B T \tau \frac{b}{b+5} \\ N_1 &= \frac{2 n k_B T \tau}{1-\alpha b} \left( \frac{b}{b+5} \right)^2 \dot{\gamma}^2 \end{aligned}$$

Notons que formellement, on retrouve les équations du modèle d'haltère hookéen dans la limite  $b \rightarrow \infty$  des équations du modèle FENE. Comme  $b$  est une mesure de la flexibilité des chaînes,  $b \rightarrow \infty$  signifie que l'élasticité des chaînes devient hookéenne et le modèle d'haltère hookéen est retrouvé.

### Elongation

De la solution de l'équation constitutive (équ. (6.5)) pour des écoulements standards d'élongation découle pour la viscosité élongationnelle [9] :

$$\eta_e = 3\eta_s + \frac{3 n k_B T \tau}{(1 + \tau\dot{\epsilon})(1 - 2\tau\dot{\epsilon})} \quad (6.8)$$

Cette viscosité élongationnelle diverge pour un taux d'élongation fini :  $\dot{\epsilon} = 1/(2\tau)$  ce qui n'est bien sûr pas physique et représente l'inconvénient majeur de ce modèle. Cette divergence est liée à un étirement infini des chaînes à  $\dot{\epsilon} = 1/(2\tau)$  qui lui non plus n'est pas physique. Le résultat de l'équation (6.8) pour la viscosité élongationnelle est donc, encore une fois, seulement valable pour des taux d'élongation faibles.

## 6.2 Détermination de $\tau$ et $b$ du modèle FENE

Nous allons maintenant déduire les paramètres  $b$  et  $\tau$  du modèle FENE à partir de nos mesures rhéologiques de la viscosité et de la contrainte normale présentés au paragraphe 5.2. Les fits avec les équations (6.2) pour  $N_1(\dot{\gamma})$  et (6.1) pour  $\eta(\dot{\gamma})$  sont montrés

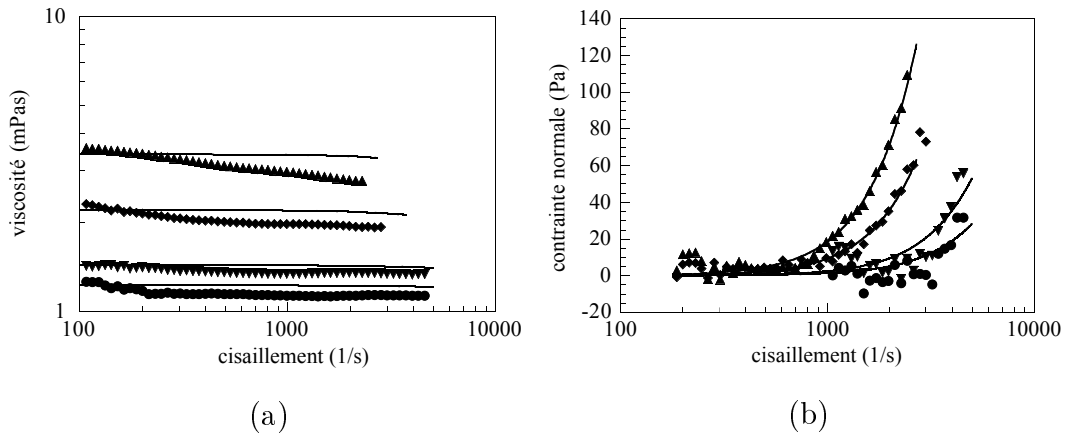


FIG. 6.1: a) La viscosité en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm (▲), 500 ppm (◆), 250 ppm (▼) et de 125 ppm (●). Les traits représentent un fit des données  $\eta(\dot{\gamma})$  avec l'équation (6.1) du modèle FENE. b) La contrainte normale en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm (▲), 500 ppm (◆), 250 ppm (▼) et de 125 ppm (●). Les traits représentent un fit avec l'équation (6.2) du modèle FENE.

sur les figures 6.1 a et b. On constate qu'avec seulement deux paramètres ajustables le modèle FENE décrit bien les résultats de contrainte normale ainsi que les mesures de viscosité. Les valeurs des paramètres  $\tau$  et  $b$  déduits des fits pour des concentrations de 125 ppm, 250 ppm, 500 ppm et 1000 ppm sont regroupés dans le tableau 6.1.

Deux remarques importantes concernant ces fits doivent être faites. Dans le régime dilué (125 ppm et 250 ppm, en dessous de  $c^* = 380$  ppm déterminé au paragraphe 5.1),  $b$  et  $\tau$  sont presque constants. On peut donc décrire les mesures expérimentales en faisant varier seulement la concentration des solutions dans les équations du modèle FENE. Deuxièmement, pour obtenir de bons fits des mesures rhéologiques, il est nécessaire d'aller vers

des valeurs de  $b$  très grandes. Ceci est une conséquence de la grande flexibilité des chaînes du polymère de PEO. Dans cette limite, les fits sont très sensibles à la valeur de  $\tau$  mais moins sensibles à celle de  $b$ . Ceci introduit une erreur relativement large sur la détermination de  $b$ , qui peut être estimée à un ordre de grandeur.

concentration	$\tau$	$b$
le polymère PEO WSR 301		
1000	0.0039	10000
500	0.0039	10000
250	0.0028	10000
125	0.0029	10000
le polymère PEO WSR 60k		
1000	0.0007	4000

TAB. 6.1: Paramètres  $\tau$  et  $b$  du modèle FENE déduits des fits des mesures rhéologiques de la viscosité et de la contrainte normale pour le PEO 301 WSR (Figs. 6.1 a et b) et le PEO 60K (Figs. 6.7), avec les équations (6.1) et (6.2) du modèle FENE.

Un test indépendant des fits est de comparer le temps de relaxation des polymères au temps de relaxation de Zimm :  $\tau = \eta_s r_g^3 / (k_B T)$  [98] où  $r_g$  est le rayon de gyration des polymères introduit au paragraphe 4.4. Le rayon de gyration déterminé par des mesures de diffusion de lumière est  $r_g \approx 0.2 \mu\text{m}$  [11]. Avec  $\eta_s = 1 \text{ mPa s}$  et  $T = 298 \text{ K}$  on obtient  $\tau = 0.002 \text{ s}$  ce qui est du même ordre de grandeur que les résultats obtenus par les fits des mesures rhéologiques avec les équations du modèle FENE.

Nous avons également effectué des fits de nos données expérimentales  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $N_1(\dot{\gamma})$  avec les équations pour la viscosité (6.6) et la contrainte normale (6.7) du modèle d'haltère hookéen. Les fits obtenus pour la contrainte normale (Fig. 6.2 a) décrivent très bien le comportement expérimental. Les valeurs pour  $\tau$  obtenues sont regroupées dans le tableau 6.2. Elles sont en bon accord avec les paramètres obtenus pour le modèle FENE. Ceci peut être compris par le fait que le polymère PEO est très flexible et on se trouve donc dans la limite  $b$  large ou la différence entre le modèle FENE et le modèle d'haltère hookéen est faible.

Le modèle d'haltère hookéen prédit une viscosité constante. Comme la dépendance de la viscosité en fonction du cisaillement est faible pour les solutions de PEO, les données rhéologiques  $\eta(\dot{\gamma})$  sont assez bien décrites dans le cadre de ce modèle. Les valeurs pour  $\tau$  obtenues par des fits de la viscosité (tableau 6.2) sont un peu plus petites que celles obtenues par les fits de  $N_1(\dot{\gamma})$ . Ceci est probablement dû à l'hypothèse d'une viscosité

concentration	$\tau$ déduit des fits de $N_1$	$\tau$ déduit des fits de $\eta(\dot{\gamma})$
le polymère PEO WSR 301		
1000	0.00385	0.00349
500	0.00385	0.00339
250	0.0027	0.0024
125	0.0026	0.00197
le polymère PEO WSR 60k		
1000	0.00062	

TAB. 6.2: Paramètre  $\tau$  du modèle d'haltère hookéen déduit des fits des mesures rhéologiques de la viscosité et de la contrainte normale pour le PEO 301 WSR (Figs. 6.2 a et 6.2 b) avec les équations (6.6) et (6.7) du modèle d'haltère hookéen. Notons, que le modèle d'haltère hookéen est pour  $N_1$  et  $\eta$  identique au modèle Oldroyd-B.

constante : dans les expériences, la viscosité commence à décroître à des cisaillements un peu plus faibles que ceux à partir desquels une contrainte normale significative peut être détectée. L'hypothèse d'une viscosité constante mène ainsi à une légère sous estimation du temps de relaxation.

## 6.3 La viscosité élongationnelle

### 6.3.1 La viscosité élongationnelle déduite du modèle FENE

En connaissant les paramètres  $b$  et  $\tau$  pour les solutions de PEO, il est maintenant possible de calculer la viscosité élongationnelle d'après le modèle FENE (équations (6.3) et (6.4)). Nous avons présenté les résultats pour les concentrations en PEO de 125 ppm, 250 ppm, 500 ppm et 1000 ppm sur la figure 6.3. On constate qu'en dessous d'un certain taux d'élongation, approximativement donné par l'inverse du temps de relaxation  $\tau$  des polymères, les résultats sont similaires à ceux d'un fluide newtonien :  $\eta_e = 3\eta$ . Dans le voisinage du point  $\dot{\epsilon}\tau = 1/2$ , on observe une augmentation abrupte de la viscosité élongationnelle. Pour des taux d'élongation encore plus élevés, toutes les chaînes de polymères sont étirées et la viscosité élongationnelle sature à une valeur qui peut être deux ou trois ordres de grandeur plus élevée que la valeur de la viscosité  $\eta$  (cf fig. 5.5).

Sur la figure 6.4, on voit une comparaison de  $\eta_e$  déduite du modèle FENE et du modèle d'haltère hookéen avec les paramètres des tableaux 6.1 et 6.2 pour une solution de PEO à 1000 ppm. A très faible taux d'élongation, les résultats des deux modèles sont en bon accord, mais la prédiction du modèle d'haltère hookéen diverge à  $\dot{\epsilon} = 1/(2\tau)$  comme

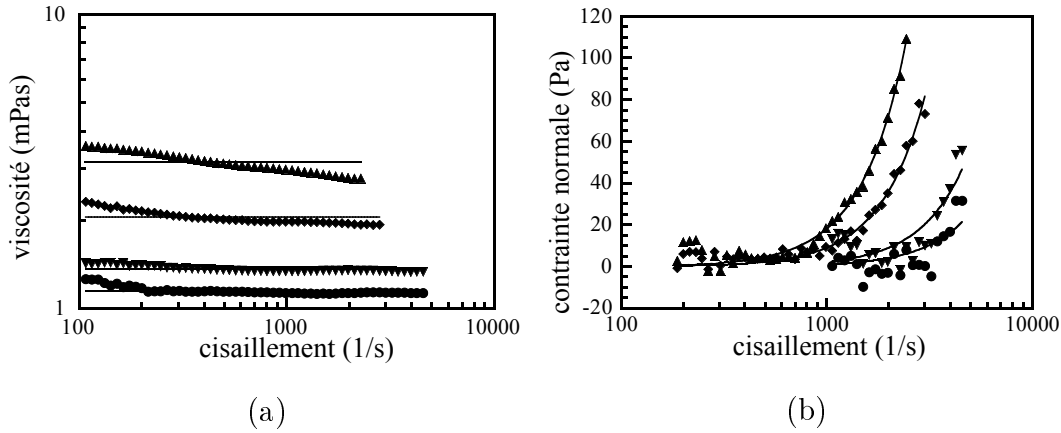


FIG. 6.2: a) La viscosité en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm (▲), 500 ppm (◆), 250 ppm (▼) et de 125 ppm (●). Les traits représentent un fit des données  $\eta(\dot{\gamma})$  avec l'équation (6.6) du modèle d'haltère hookéen. b) La contrainte normale en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm (▲), 500 ppm (◆), 250 ppm (▼) et de 125 ppm (●). Les traits représentent un fit avec l'équation (6.7) du modèle d'haltère hookéen.

discuté avant. Ce modèle n'est donc pas adapté à décrire la viscosité élongationnelle dans une gamme de cisaillements plus large.

### 6.3.2 Les mesures rhéologiques $\eta(\dot{\epsilon})$

Les mesures rhéologiques sont effectuées sur un rhéomètre du type jets opposés [62, 36] (“opposed jet” ou “opposed nozzle rheometer”). La méthode des jets opposés est la seule technique rhéologique adaptée à la détermination de  $\eta_e(\dot{\epsilon})$  pour des solutions diluées de polymères [36]. Nous décrivons ici brièvement le fonctionnement d'un tel rhéomètre (Fig. 6.5). Un rhéomètre à jets opposés consiste en deux tuyères opposées séparées d'une faible distance et entourées de liquide. Quand le liquide est aspiré par les tuyères, un écoulement élongationnel stationnaire avec point d'arrêt est créé. Les problèmes majeurs de cette méthode sont d'un côté le fait que le polymère reste très peu de temps dans l'écoulement élongationnel. Ceci a pour conséquence qu'on n'atteint souvent pas de régime stationnaire. D'autre part un polymère qui passe proche du point d'arrêt demeure plus longtemps dans l'écoulement qu'un polymère qui passe plus loin de ce point.

Pour déterminer  $\eta_e(\dot{\epsilon})$ , on mesure ensuite le couple  $M$  sur un bras flexible de longueur  $L$  nécessaire pour maintenir une distance constante entre les deux tuyères. En supposant que l'écoulement est purement élongationnel, la force sur les tuyères  $M/L$  divisée par leur

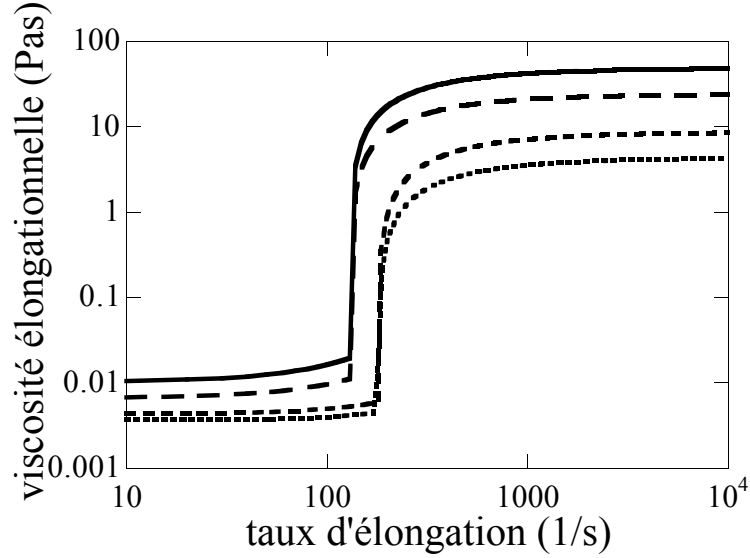


FIG. 6.3: La viscosité élongationnelle d'après le modèle FENE avec les paramètres découlant des fits des données rhéologiques  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $N_1(\dot{\gamma})$  (tableau 6.1) pour 125 ppm ( $\cdots$ ), 250 ppm ( $- -$ ), 500 ppm ( $- \cdot -$ ) et 1000 ppm ( $-$ ).

surface  $R^2\pi$  où  $R$  est le rayon des tuyères donne la différence de contraintes  $\tau_{zz} - \tau_{xx}$  [62] :

$$\tau_{zz} - \tau_{xx} = \frac{M}{LR^2\pi} \quad (6.9)$$

On peut définir un taux d'élongation apparent [62] :

$$\dot{\epsilon}_a = \frac{2Q}{R^2\pi d} \quad (6.10)$$

où  $Q$  est le débit et  $d$  la distance entre les deux tuyères. La viscosité élongationnelle  $\eta_e(\dot{\epsilon}) = (\tau_{zz} - \tau_{xx}) / \dot{\epsilon}_a$  découle ensuite de ces deux équations.

Nous effectuons nos mesures sur un rhéomètre Rheometrics Fluids Analyser (RFX) de Rheometric Scientific avec des tuyères de deux rayons différents,  $R = 0.5$  mm et  $R = 0.25$  mm, au département "Chemical Engineering" de l'université de Leuven, Belgique. Le temps de relaxation de polymères PEO étant très court ( $\tau \sim 1$  ms), nous pensons qu'on atteint un état stationnaire lors des expériences de jets opposés avec ce polymère. Comme les écoulements réels créés dans le rhéomètre ne sont pas purement élongationnels [36] et des effets d'inertie peuvent intervenir [36] nous utilisons, comme lors des mesures de la contrainte normale (paragraphe 5.2.4), les résultats obtenus pour de l'eau pure comme référence.

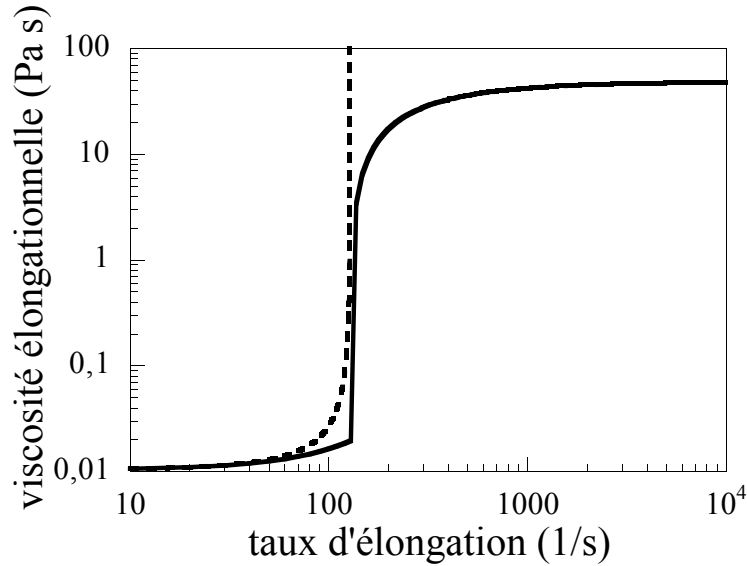


FIG. 6.4: La viscosité élongationnelle d'après le modèle FENE (équations (6.3) et (6.4)) avec les paramètres du tableau 6.1 (—) et d'après le modèle d'haltère hookéen (équation (6.8)) avec les paramètres du tableau 6.2 pour 1000 ppm (- -).

### 6.3.3 Comparaison

Dans ce paragraphe, nous allons comparer les résultats de viscosité élongationnelle déduits du modèle FENE aux résultats expérimentaux obtenus à l'aide du rhéomètre RFX. On voit cette comparaison pour une solution de PEO à 250 ppm sur la figure 6.6. On constate que la viscosité élongationnelle découlant du modèle FENE atteint une valeur de plateau à taux d'élongation élevé qui est 10 fois plus élevée que les données rhéologiques. En considérant les erreurs importantes sur la détermination de  $b$  et les mesures rhéologiques, cet accord semble favorable. A taux d'élongation élevé, la viscosité élongationnelle découlant du modèle FENE est proportionnelle à  $\tau$  et  $b$ . En considérant que la détermination de  $\tau$  est très précise, tandis que celle de  $b$  est entachée d'une erreur importante nous essayons de faire varier ce dernier pour obtenir un bon accord entre les valeurs rhéologiques et la prédiction du modèle FENE. On voit sur la figure 6.6 qu'on obtient un bon accord pour  $b = 1000$ . Notons que les fits de  $N_1$  et de  $\eta$  montrés sur les figures 5.5 et 5.9 ne changent effectivement à peine quand  $b$  varie de  $b = 10000$  à  $b = 1000$ . Les fits pour  $b = 1000$  ne sont pas montrés car ils coïncident sur les figures en fait avec les fits avec  $b = 10000$ .

Le problème majeur de la détermination de  $\eta_e$  à partir des fits des mesures rhéologiques de  $\eta$  et  $N_1$  est donc le fait que ceux ci sont peu sensibles à  $b$  dans la limite des polymères

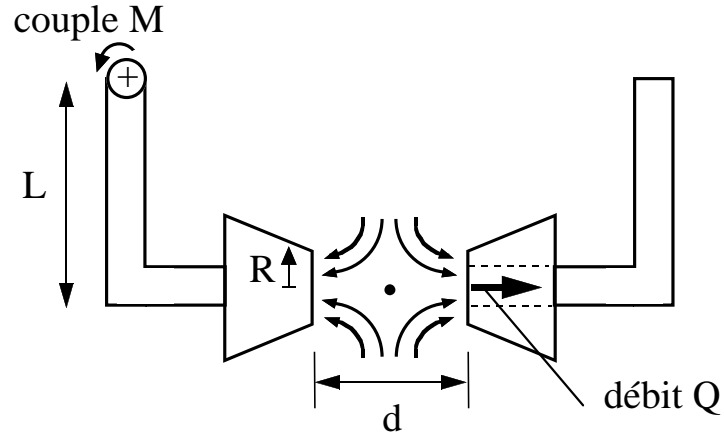


FIG. 6.5: Le rhéomètre à jets opposés. Deux tuyères de rayon  $R$  opposées sont séparées d'une distance  $d$ . Lorsque le liquide qui les entoure est aspiré par les tuyères avec un débit  $Q$  un écoulement élongationnel stationnaire avec un point d'arrêt se forme. La viscosité élongationnelle cause une force sur les tuyères qui est déterminée par des mesures du couple  $M$  sur un bras flexible de longueur  $L$  nécessaire pour maintenir une distance  $d$  constante entre les deux tuyères.

très flexibles.

Nous essayons donc de déterminer  $b$  encore d'une autre façon. Doyle *et al.* [32] proposent de calculer  $b$  à partir d'un modèle moléculaire en supposant que la chaîne de polymère consiste en différents segments, dont chacun a une longueur dite longueur de Kuhn. On trouve :

$$b = \frac{6M_w \sin^2 \theta}{C_\infty M_0} \quad (6.11)$$

où  $\theta = 109.5^\circ$  est l'angle du tétraèdre et  $M_0$  la masse moléculaire d'un monomère. Le paramètre  $C_\infty$  est le nombre caractéristique d'unités de monomères dans une longueur de Kuhn. Cette quantité est tabulée pour la plupart des polymères et peut sinon être obtenue par diffusion de lumière. Pour le PEO WSR301,  $C_\infty$  vaut 3.8 [72] et on trouve  $b = 96000$ . Cette valeur est beaucoup plus élevée que la valeur  $b = 10000$  obtenue par les fits des données rhéologiques  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $N_1(\dot{\gamma})$ . On voit sur la figure 6.6 le résultat pour la viscosité élongationnelle du modèle FENE avec  $b = 96000$ . Due à la proportionnalité de  $\eta_e$  à  $b$ , on observe que la valeur calculée de  $b$  mène à des résultats pour la viscosité élongationnelle qui sont maintenant deux ordres de grandeur plus larges que les données rhéologiques  $\eta_e(\dot{\epsilon})$ . La méthode de Doyle *et al.* [32] pour calculer  $b$  a été discutée par Sridhar *et al.* [84] qui concluent qu'elle surestime de façon significative la valeur obtenue pour  $b$ , ce qui est en accord avec nos observations.

En conclusion, la détermination de la valeur de  $b$  reste difficile dans la limite des



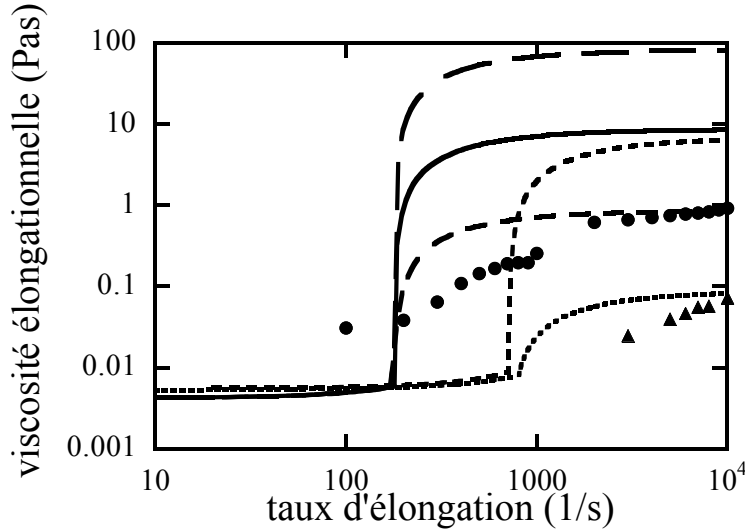


FIG. 6.6: Mesures rhéologiques de la viscosité élongationnelle pour une solution de PEO WSR301 de 250 ppm (●) et de PEO WSR N60K (▲). Les traits représentent  $\eta_e(\dot{\epsilon})$  déduite du modèle FENE (équations (6.3) et (6.4)) pour le PEO WSR301 et  $b = 10000$  (—),  $b = 1000$  (---) et  $b = 96000$  (- -) et pour le PEO WSR N60K et  $b = 4000$  (- -) et  $b = 50$  (···).

polymères très flexible et introduit ainsi une erreur significative pour la viscosité élongationnelle découlant du modèle FENE. Malgré ces difficultés et tenant compte du fait que la détermination de la viscosité élongationnelle est très difficile [42] pour des solutions diluées de polymères, l'accord sur  $\eta_e(\dot{\epsilon})$  par les deux méthodes (mesures de  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $N_1(\dot{\epsilon})$  et mesures rhéologiques directes) semble favorable.

## 6.4 Le polymère PEO WSR N60K

Nous déterminons la viscosité élongationnelle des mesures rhéologiques de  $\eta(\dot{\gamma})$  et de  $N_1(\dot{\gamma})$  de plus pour un autre polymère : le polymère PEO WSR N60K, de masse moléculaire plus faible. Ce résultat sera ensuite comparé à des mesures rhéologiques directes de  $\eta_e(\dot{\epsilon})$ . Cela permet de tester la validité de cette procédure. Malheureusement, une contrainte normale significative peut être détectée seulement pour des concentrations supérieures à 1000 ppm. Les résultats des mesures rhéologiques ainsi que les fits avec les équations (6.1) et (6.2) de modèle FENE pour cette concentration  $\eta$  et  $n_1$  sont montrés sur les figure 6.7 a et 6.7 b. Comme auparavant, le modèle FENE décrit les deux courbes de façon satisfaisante. Les paramètres  $\tau$  et  $b$  découlant des fits sont présentés dans le tableau 6.1. On constate que  $\tau$  et  $b$  sont plus petits pour le polymère PEO WSR N60K

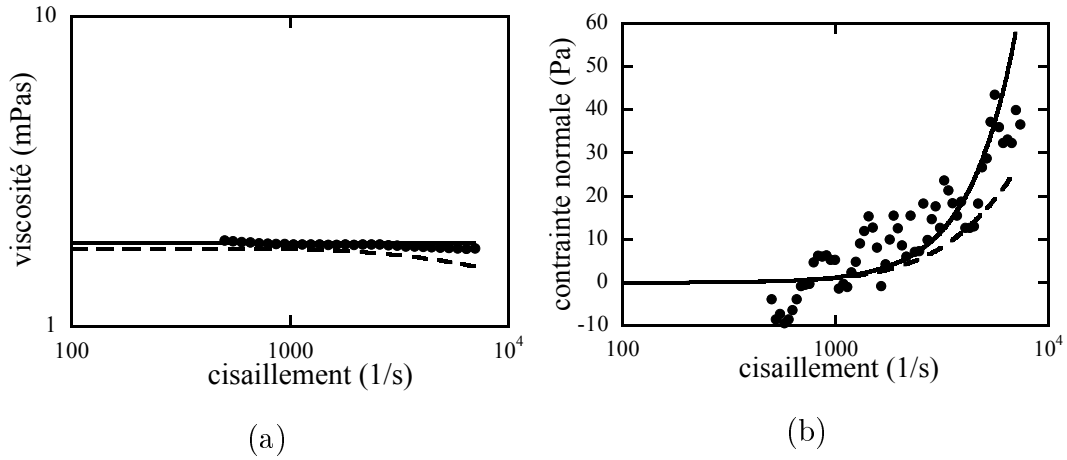


FIG. 6.7: a) La viscosité en fonction du cisaillement pour les solutions de PEO de 1000 ppm ( $\bullet$ ). Les traits représentent un fit des données  $\eta(\dot{\gamma})$  avec l'équation (6.1) du modèle FENE pour  $b = 4000$  (—) et  $b = 50$  (- -). b) La contrainte normale en fonction du cisaillement pour une solutions de PEO WSR N60K de de 1000 ppm ( $\bullet$ ). Le traits représentent un fit avec l'équation (6.2) du modèle FENE pour  $b = 4000$  (—) et  $b = 50$  (- -).

( $M_w = 2 * 10^6$ ) que pour le polymère PEO WSR301 ( $M_w = 4 * 10^6$ ). Ceci indique que le polymère plus court (PEO WSR N60K) est moins flexible et a un rayon de gyration  $r_g$  plus faible. En utilisant un modèle simple pour la chaîne des polymères [9], une modification de  $M_w$  d'un facteur 2 devrait mener à un changement de  $r_g$  d'approximativement un facteur  $\sqrt{2}$ . Le temps de relaxation de Zimm est diminué de  $(1/\sqrt{2})^3$ , ce qui mène à  $\tau_{\text{Zimm}} = 0.0007$ . De nouveau, ceci est en bon accord avec le résultat obtenu par les fits du modèle FENE. L'expression analytique pour  $b$  de Doyle *et al.* [32] (équation (6.11)) donne une dépendance linéaire de  $b$  en fonction de  $M_w$ . Le paramètre  $b$  obtenu pour le PEO WSR301 devrait donc être le double de celui obtenu pour le PEO WSR 60K. Ceci est en accord avec nos expériences où nous trouvons un rapport 2.5.

Les prédictions pour la viscosité élongationnelle sont comparées avec les résultats des mesures rhéologiques  $\eta_e(\dot{\epsilon})$  sur la figure 6.6. Comme auparavant, les données expérimentales sont plus petites que la prédiction du modèle FENE. Un bon accord peut être obtenu en diminuant la valeur de  $b$  à 50. On observe par contre que les fits des données rhéologiques pour  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $N_1(\dot{\gamma})$  s'ajustent moins bien pour cette valeur de  $b$  plus petite, contrairement à ce qui était le cas pour le PEO WSR301. Ceci est dû au fait que ceux-ci sont, pour le polymère moins flexible, plus sensibles à la valeur de  $b$ .

## 6.5 Conclusion

Nous avons déterminé la viscosité élongationnelle des solutions diluées de PEO par deux méthodes différentes. Premièrement, nous avons déduit la viscosité élongationnelle des mesures de contrainte normale. Pour cela, nous utilisons une équation constitutive dans le cadre du modèle FENE-P pour calculer la viscosité et la contrainte normale en cisaillement. Ces résultats peuvent être comparés à des mesures rhéologiques en cisaillement afin de déterminer les paramètres ajustables de l'équation constitutive, qui sont une amplitude  $b$  et un temps de relaxation  $\tau$ . Ensuite, la solution de l'équation constitutive pour un écoulement d'élongation donne la viscosité élongationnelle en fonction du taux d'élongation  $\dot{\epsilon}$ . Deuxièmement, la viscosité élongationnelle a été mesurée sur un rhéomètre à jets opposés.

On observe que les données expérimentales pour la contrainte normale et la viscosité sont bien décrites par les équations du modèle FENE avec seulement deux paramètres ajustables. Dans le régime dilué,  $\tau$  et  $b$  sont indépendants de la concentration en polymères des solutions. En utilisant les paramètres découlant des fits de  $\eta(\dot{\gamma})$  et  $N_1(\dot{\gamma})$ , on peut calculer la viscosité élongationnelle. Ce résultat est comparé aux résultats pour la viscosité élongationnelle obtenue par des mesures rhéologiques.

A cisaillement élevé où la viscosité élongationnelle se stabilise sur un plateau, on constate que les résultats expérimentaux sont d'une ordre de grandeur plus petits que la prédiction du modèle FENE. Lors de la détermination des paramètres  $\tau$  et  $b$ , la valeur de  $\tau$  peut être déterminée avec précision, tandis que les fits sont peu sensibles à la valeur de  $b$ . Ceci est dû au fait que le PEO est un polymère très flexible. Pour de tels polymères, la viscosité n'est presque pas rhéofluidifiante et la contrainte normale croît à peu près quadratiquement avec le cisaillement. Un tel comportement est prédit par le modèle Oldroyd-B. Ce modèle découle du modèle FENE dans la limite  $b \rightarrow \infty$  et ne contient que le paramètre  $\tau$ . Ceci explique pourquoi une modification de  $b$  a peu d'influence sur les fits des données rhéologiques. La détermination de  $b$  est donc entachée d'erreur significative. La valeur de  $b$  calculée d'après un modèle moléculaire s'avère être encore plus élevée que celle découlant des fits des données rhéologiques en cisaillement. Cette méthode est en effet connue pour donner des valeurs trop élevés pour  $b$ . La détermination de  $b$  reste ainsi difficile. La viscosité élongationnelle étant proportionnelle à  $b$ , ceci induit une erreur significative sur la détermination de la viscosité élongationnelle et constitue ainsi le problème majeur de cette méthode. Notons qu'il n'est pas possible de déterminer la viscosité élongationnelle dans le cadre du modèle Oldroyd-B, car ce modèle prédit une divergence non physique de cette viscosité à cisaillement fini. Il est donc essentiel de déterminer  $b$ . En tenant compte des problèmes concernant la détermination de  $b$  et la détermination rhéologique la méth-

ode rhéologique de la viscosité élongationnelle, l'accord entre la viscosité élongationnelle découlant du modèle FENE et des mesures rhéologiques apparaît favorable pour les solutions de PEO. Il semble que la détermination de la viscosité élongationnelle à partir des mesures de  $N_1$  et de  $\eta$  permet d'obtenir une bonne estimation de l'ordre de grandeur de cette quantité.

Ce serait intéressant de réaliser des expériences dans des solutions de polymères semi-flexibles, pour lesquelles on devrait trouver des valeurs plus faibles du paramètre  $b$  que dans les solutions de PEO, polymère extrêmement flexible. Dans cette limite, la détermination de  $b$  devrait être plus exacte, ce qui permettra de prédire la viscosité élongationnelle avec plus de précision. En passant des polymères peu flexibles à des polymères très flexibles, on pourrait obtenir des informations supplémentaires sur le comportement de  $b$  en fonction de la flexibilité. Ceci pourrait ainsi permettre, par extrapolation, d'obtenir une meilleure précision sur cette valeur pour les polymères très flexibles. Ceci nous mènera vers une meilleure détermination de la viscosité élongationnelle dans ces polymères très flexibles.



## Troisième partie

### L'instabilité de Saffman-Taylor



# Chapitre 7

## La loi de Darcy pour un fluide rhéofluidifiant

Dans une cellule de Hele-Shaw, la loi de Darcy (équation (1.1)) relie le gradient de pression appliqué entre l'entrée et la sortie à la vitesse des doigts visqueux. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 1.2, elle est l'une des équations de base permettant de décrire l'instabilité de Saffman-Taylor. Elle est donc nécessaire pour tout traitement théorique de l'instabilité dans le cadre d'une approche à deux dimensions. Dans la plupart des cas, la même approche est choisie pour les fluides non-newtoniens. Dans ce chapitre, nous allons discuter les modifications nécessaires de cette loi pour l'adapter à un fluide rhéofluidifiant. Cet étude est aussi présentée dans Lindner *et al.* [56].

Avant d'aborder l'étude de la loi de Darcy, nous décrirons le montage expérimental utilisé lors de toutes les expériences de digitation visqueuse présentées dans la suite.

### 7.1 Le montage expérimental

Les expériences de digitation visqueuse sont effectuées dans une cellule de Hele-Shaw rectangulaire (Fig. 7.1) qui consiste en deux plaques de verre séparées d'un intervalle de faible épaisseur. Les dimensions du canal ainsi formé sont variables : la largeur peut prendre les valeurs  $W = 2$  cm,  $W = 4$  cm et  $W = 8$  cm et l'épaisseur entre les plaques peut varier de  $b = 0.125$  mm à  $b = 1$  mm. La longueur de canal est de  $l = 75$  cm. L'épaisseur des plaques de verre est de 1.5 cm afin d'éviter une déformation des plaques au cours de l'expérience. Nous disposons de plus d'une petite cellule de Hele-Shaw de longueur  $l = 27$  cm, dont les autres dimensions sont similaires à la cellule décrite ci-dessus. Cette cellule ne sera utilisée que pour les expériences dans les fluides à seuil (chapitre 10).

Le canal est rempli avec le fluide complexe de viscosité  $\eta$ . Ce fluide est ensuite poussé



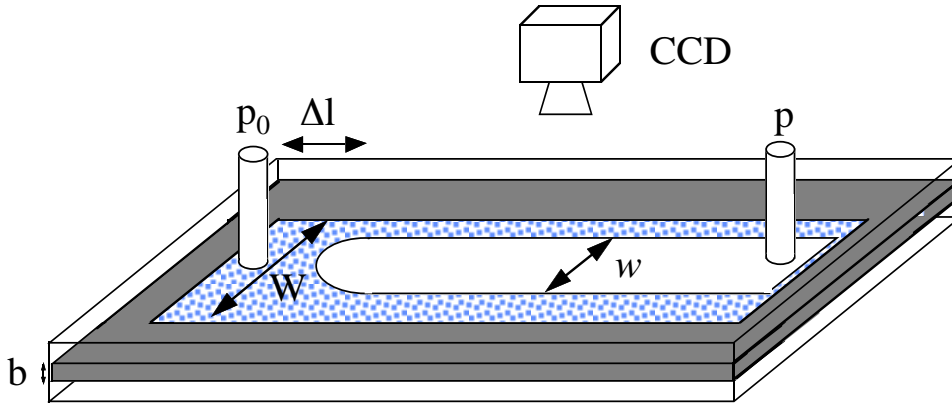


FIG. 7.1: La cellule de Hele-Shaw constituée par deux plaques de verre séparées d'un intervalle dont l'épaisseur  $b$  est faible devant sa largeur  $W$ . Cette cellule est remplie avec le fluide complexe de viscosité  $\eta$  qui est ensuite poussé avec de l'air. La tension de surface entre les deux fluides est désignée par  $\sigma$ . Une caméra permet d'enregistrer le mouvement du doigt, dont on peut ensuite déterminer la largeur relative  $\lambda = w/W$  en fonction de sa vitesse  $U$ . Des mesures de la pression appliquée  $p$  permettent de déterminer le gradient de pression entre l'entrée et la sortie de la cellule :  $\nabla p = (p - p_0) / \Delta l$ .

avec de l'air comprimé dont on néglige la viscosité. La tension de surface entre les deux fluides est désignée par  $\sigma$ . La croissance du doigts est enregistrée par une caméra reliée à un magnétoscope. On peut suivre le mouvement du doigt le long de la cellule avec la caméra. Un chronomètre affiche le temps sur les enregistrements au cours de l'expérience. On détermine ainsi la largeur des doigts  $w$  en fonction de leur vitesse  $U$ . La largeur relative des doigts est définie comme :  $\lambda = w/W$ .

De plus, il est possible de déterminer le gradient de pression appliqué. Ce gradient de pression est défini comme :  $\nabla p = \Delta p / \Delta l$ . La pression  $p$  de l'air comprimé qui pousse la solution de polymères est déterminée à l'aide d'une colonne d'eau. Ceci permet d'obtenir une précision de 0.01 bar. La sortie de la cellule est à la pression atmosphérique  $p_0$ . Dans le doigt, la pression peut être considérée comme étant constante et égale à la pression appliquée  $p$ , ce qui donne  $\Delta p = p_0 - p$ .  $\Delta l$  est la distance entre la pointe du doigt et la sortie de la cellule (voir figure 7.1).

Notons que la pression appliquée  $p$  est maintenue constante au cours d'une expérience pendant que  $\Delta l$  diminue quand le doigt avance dans la cellule. Le gradient de pression augmente donc lors d'une expérience. D'après le loi de Darcy (équ. (1.1)) dont nous allons tester la validité pour les fluides non-newtoniens dans ce chapitre, la vitesse des

doigts  $U$  est proportionnelle au gradient de pression  $\nabla p$ . Une augmentation de  $\nabla p$  au cours de l'expérience entraîne donc une accélération du doigt. Nous avons vérifié que les résultats ainsi obtenus sont identiques à ceux obtenus en régime de vitesse stationnaire, sous condition de ne pas considérer les résultats obtenus très proche de la sortie ( $\sim 10$  cm) où le gradient de vitesse diverge.

## 7.2 La loi de Darcy pour un fluide newtonien

La loi de Darcy pour un fluide newtonien est déjà donnée dans le paragraphe 1.2. Nous allons rappeler ici son expression pour un tel fluide. Le profil de vitesse dans une cellule de Hele-Shaw dans la direction de l'épaisseur de la cellule (correspondant à l'axe  $z$  de la figure 1.1 se calcule à partir de l'équation de Navier Stokes (équation (2.7)) en négligeant le terme d'inertie. On trouve un profil de vitesse parabolique, dit de Poiseuille :

$$\mathbf{v} = -\frac{1}{2\eta}\nabla p z(z-b) \quad (7.1)$$

où  $z$  représente la direction selon l'épaisseur de la cellule et les bords se trouvent à  $z = 0$  et  $z = b$ . On voit ce profil sur la figure 7.4. Pour obtenir la loi de Darcy, on moyenne ensuite ce profil de vitesse sur l'épaisseur  $b$  de la cellule et on obtient :

$$\mathbf{V} = -\frac{b^2}{12\eta}\nabla p \quad (7.2)$$

où  $\mathbf{V}$  représente la vitesse moyenne d'un écoulement de Poiseuille en cellule de Hele-Shaw. En digitation visqueuse cette vitesse correspond à la vitesse moyenne loin devant le doigt. Elle est reliée à la vitesse  $\mathbf{U}$  du doigt par  $\mathbf{V} = \lambda\mathbf{U}$ . En négligeant l'épaisseur du film de liquide qui reste sur les plaques après le passage du doigt, cette relation découle directement de la conservation de la masse. La vitesse  $V$  est donc pour un fluide newtonien une fonction linéaire du gradient de pression.

## 7.3 La loi de Darcy pour un fluide rhéofluidifiant

Dans ce paragraphe, nous allons discuter l'adaptation de la loi de Darcy aux fluides rhéofluidifiants. L'approche la plus facile est de simplement remplacer dans l'équation 7.2 la viscosité  $\eta$  par la viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  qui dépend du cisaillement :

$$\mathbf{V} = -\frac{b}{12\eta(\dot{\gamma})}\nabla p. \quad (7.3)$$

On obtient ainsi une loi de Darcy effective qui est beaucoup utilisée [12, 4, 23, 5, 50]. Nous allons maintenant tester cette loi de Darcy avec nos résultats expérimentaux.

Pour cela, nous mesurons la vitesse des doigts en fonction du gradient de pression appliqué pour des solutions de Xanthane de 50 ppm, 100 ppm, 500 ppm et 1000 ppm dans une cellule de Hele-Shaw de géométrie de  $W = 4$  cm et  $b = 0.25$  mm. Comme nous

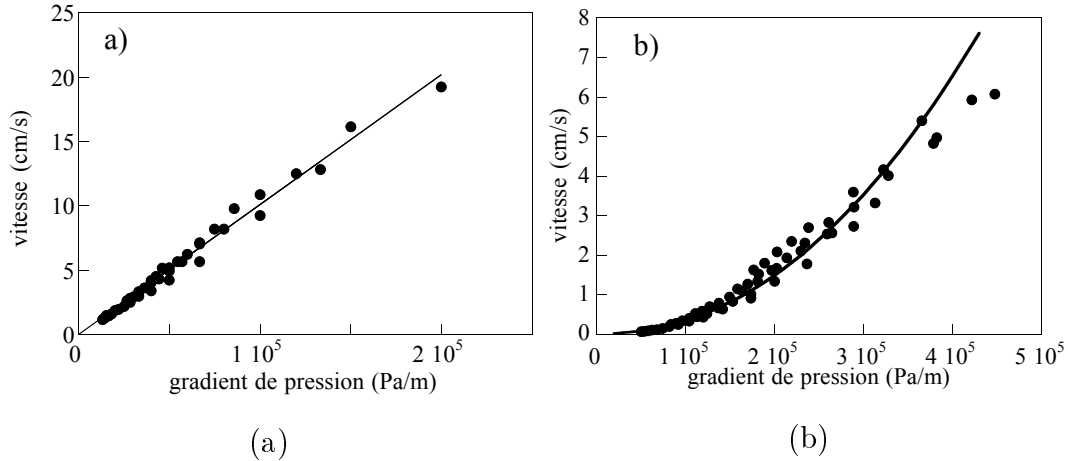


FIG. 7.2: Vitesse loin du doigt en fonction du gradient de pression appliqué pour (a) du glycérol et (b) une solution de Xanthane à 1000 ppm. Le trait représente la prédiction de la loi de Darcy (7.2) pour le glycérol et un fit en loi de puissance pour la solution de Xanthane.

l'avons montré au paragraphe 5.1.2, une augmentation de la concentration des solutions de Xanthane produit une augmentation du caractère rhéofluidifiant des solutions. On va ainsi continuellement d'un fluide faiblement rhéofluidifiant à 50 ppm à un fluide fortement rhéofluidifiant à 1000 ppm.

Des mesures de la largeur des doigts  $\lambda$  et de leur vitesse  $U$  permettent d'obtenir la vitesse loin du doigt :  $V = \lambda U$ . De plus, des mesures de la pression appliquée  $p$  et de  $\Delta l$  au cours de l'expérience permettent de calculer le gradient de pression  $\nabla p = (p - p_0) / \Delta l$  (cf paragraphe 7.1). Nous pouvons ainsi déterminer la vitesse  $V$  en fonction du gradient de pression  $\nabla p$ .

La figure 7.2 montre les résultats pour une solution de Xanthane de 1000 ppm ainsi que les résultats obtenus pour un fluide newtonien. On constate que la relation entre la vitesse et le gradient de pression est linéaire pour le fluide newtonien et que les valeurs expérimentales sont en bon accord avec la prédiction de la loi de Darcy newtonienne (équation (7.2)) (en traits pleins sur la figure 7.2 a). Pour la solution de Xanthane, la vitesse n'est pas une fonction linéaire du gradient de pression, mais la pente de la fonction  $V(\nabla p)$  augmente avec la vitesse. En supposant une loi de Darcy de la forme de l'équation (7.3), la pente est proportionnelle à  $1/\eta$  et la viscosité rhéofluidifiant qui décroît avec le cisaillement et donc avec la vitesse entraîne ainsi une augmentation de cette pente avec  $V$ . Nous allons maintenant tester si la loi de Darcy effective (équation (7.3)) peut décrire

le comportement observé dans la solution de Xanthane. Nous calculons la viscosité pour

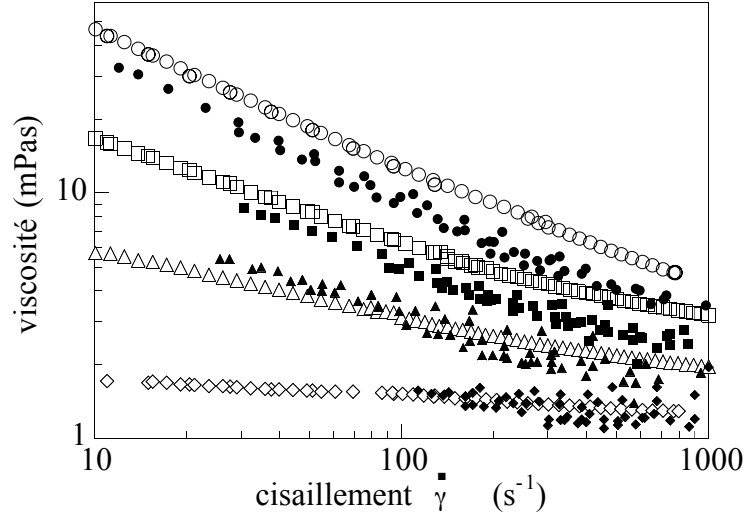


FIG. 7.3: La viscosité en fonction du cisaillement pour différentes solutions de Xanthane, 50 ppm ( $\diamond$ ), 100 ppm ( $\Delta$ ), 500 ppm ( $\square$ ) et 1000 ppm ( $\circ$ ). Les symboles ouverts représentent les résultats des mesures rhéologiques et les symboles remplis représentent les résultats des mesures de digitation visqueuse.

chaque point  $V(\nabla p)$  de la courbe expérimentale à partir de la loi de Darcy effective (équation (7.3)). La connaissance de la vitesse permet de calculer le cisaillement dans la cellule. Le gradient de vitesse du profil parabolique de l'écoulement de Poiseuille est moyenné sur l'épaisseur de la cellule et on obtient :  $\dot{\gamma} = \left( \frac{\partial v_x}{\partial y} \right)_{\text{moyen}} = \frac{3V}{b}$ . On obtient donc à partir des expériences de digitation visqueuse des résultats de la forme  $\eta(\dot{\gamma})$ . Ces résultats peuvent être comparés aux résultats obtenus par des mesures rhéologiques. La comparaison est montrée sur la figure 7.3. On constate que pour les solutions de 50 ppm et de 100 ppm, les résultats obtenus par les deux méthodes indépendantes sont en bon accord. Pour les concentrations de 500 ppm et de 1000 ppm, les résultats obtenus par les mesures de digitation visqueuse commencent cependant à dévier des résultats rhéologiques. La loi de Darcy effective (équation (7.3)) est donc valable pour des solutions faiblement rhéofluidifiantes. Pour des solutions qui sont plus fortement rhéofluidifiantes, on observe des écarts et la loi de Darcy effective n'est plus valable.

Cette loi de Darcy effective découle directement de la loi de Darcy newtonienne qui est obtenue en moyennant sur le profil parabolique de l'écoulement de Poiseuille (équation (7.1)). Il est cependant connu que le profil d'écoulement pour les fluides non-newtoniens diffère du profil parabolique. Ceci explique la limitation de la validité de la loi de Darcy effective (équation (7.3)).

Une amélioration peut être obtenue en recalculant la loi de Darcy à partir d'un profil de vitesse dans un écoulement de fluide non-newtonien. Pour cela, il est nécessaire de disposer d'une expression donnant la viscosité en fonction du cisaillement. En supposant un modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équation (2.14)) pour la viscosité du fluide rhéofluidifiant, on peut calculer le profil de vitesse dans la cellule de Hele-Shaw. Ce profil s'écrit :

$$v = \frac{1}{1 + \frac{1}{n}} \left( \frac{|\nabla p|}{k_1} \right)^{1/n} \left( \left( \frac{b}{2} \right)^{1 + \frac{1}{n}} - \left| \frac{b}{2} - z \right|^{1 + \frac{1}{n}} \right) \quad (7.4)$$

Les résultats sont présentés sur la figure 7.4. Les écarts par rapport au profil newtonien sont petits pour un fluide faiblement non-newtonien et augmentent quand le fluide devient plus rhéofluidifiant : le profil devient de plus en plus carré. La loi de Darcy non-

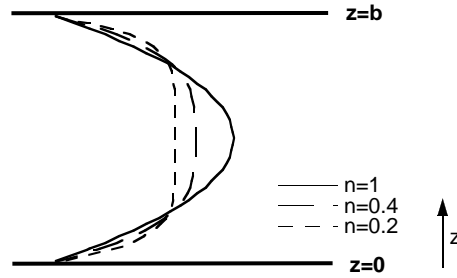


FIG. 7.4: Le profil de vitesse pour un fluide newtonien ( $n = 1$ ) et pour des fluides rhéofluidifiants ( $n = 0.4$  et  $n = 0.2$ ). Pour un fluide newtonien, ce profil est parabolique et devient de plus en plus carré au fur et à mesure que le caractère rhéofluidifiant des fluides augmente.

newtonienne est obtenue de manière identique au cas newtonien en moyennant ce profil de vitesse sur l'épaisseur de la cellule. On obtient une loi de Darcy pour un fluide non-newtonien en loi de puissance que nous appellerons dans la suite loi de Darcy non-newtonienne :

$$V = \frac{b}{2(2 + 1/n)} \left( \frac{b}{2k_1} \right)^{1/n} |\nabla p|^{1/n} \quad (7.5)$$

La même approche est utilisée par Wilson [96] qui utilise également un modèle en loi de puissance pour la viscosité. Kondic *et al.* [51] poursuivent la même procédure dans un cadre plus général, sans fixer la dépendance exacte de  $\eta$  par rapport à  $\dot{\gamma}$ . De la loi de Darcy non-newtonienne (équation (7.5)) découle une proportionnalité entre la vitesse et le gradient de pression à la puissance  $1/n$ . La même proportionnalité est trouvée si on remplace la viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  dans la loi de Darcy effective (équation 7.3) par  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{(n-1)}$ , mais le préfacteur est différent.

Nous comparons maintenant les résultats obtenus lors des expériences de digitation visqueuse dans les solutions de 500 ppm et de 1000 ppm aux prédictions de la loi de Darcy non-newtonienne (équation (7.5)). Dans le paragraphe 5.1.2 nous avons montré (cf tableau 5.1) que la loi de puissance pour la viscosité de ces deux solutions s'applique dans la gamme de cisaillements moyens de nos expériences ( $10 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 1000 \text{ s}^{-1}$ ). Ceci justifie l'utilisation d'une modèle en loi de puissance pour l'obtention de la loi de Darcy non-newtonienne. Nous procédons de la même façon que ci-dessus et calculons  $\eta(\dot{\gamma})$  à partir des résultats expérimentaux  $V(\nabla p)$ . Pour cela, la valeur de  $n$  est déterminée par un fit des résultats rhéologiques de la viscosité rhéofluidifiante (cf tableau 5.1) et  $k_1$  est calculé à l'aide de l'équation 7.5 pour chaque point  $V(\nabla p)$ . Le cisaillement moyen dans la cellule est maintenant :

$$\dot{\gamma} = \frac{V}{b} \frac{2(1+2n)}{1+n} \quad (7.6)$$

Ceci permet de nouveau d'obtenir des résultats de la forme  $\eta(\dot{\gamma})$  qui peuvent être comparés aux mesures rhéologiques. La figure 7.5 montre que les mesures rhéologiques et les valeurs déduites de la digitation visqueuse sont en bon accord. La loi de Darcy non-newtonienne

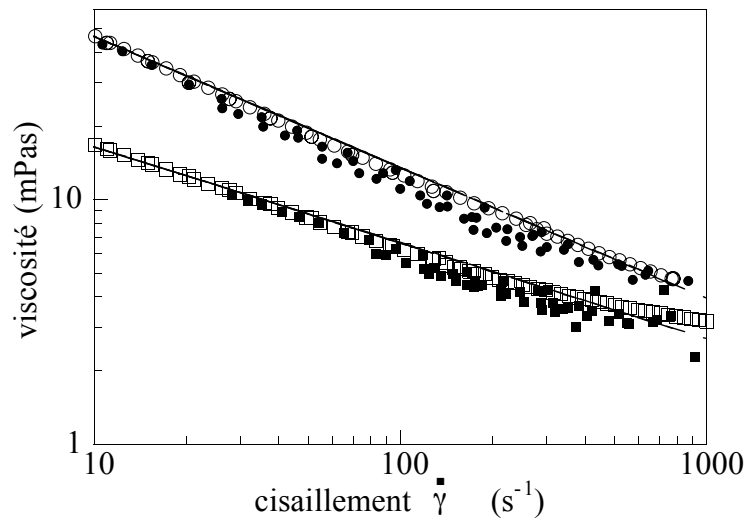


FIG. 7.5: La viscosité en fonction du cisaillement pour les solutions de Xanthane de 500 ppm ( $\square$ ) et 1000 ppm ( $\circ$ ). Les symboles ouverts représentent les résultats des mesures rhéologiques et les symboles remplis représentent les résultats des mesures de digitation visqueuse. Les traits représentent les fits du modèle en loi de puissance.

décrit donc bien le comportement des fluides fortement rhéofluidifiants.

Une autre façon de vérifier la loi de Darcy non-newtonienne (équation (7.5)) est de faire un fit des données de la figure 7.2 b avec cette loi. On en déduit  $n = 0.467$  et  $k_1 = 158 \text{ mPa s}^n$ . Le fit des mesures directes de viscosité avec le modèle en loi de puissance

de la viscosité donne  $n = 0.463$  et  $k_1 = 160 \text{ mPa s}^n$  (cf. tableau 5.1). La précision sur les mesures rhéologiques peut être estimée à 5 %. Les paramètres obtenus par les deux méthodes sont, à la précision de nos mesures, en très bon accord.

## 7.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié deux modifications de la loi de Darcy pour les fluides rhéofluidifiants. La première consiste à simplement remplacer dans la loi de Darcy classique la viscosité  $\eta$  par la viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  qui dépend du cisaillement pour obtenir une loi de Darcy effective. Pour des fluides faiblement rhéofluidifiant ( $1 > n > 0.65$ ), les résultats expérimentaux de la vitesse en fonction du gradient de pression sont bien décrits par cette loi de Darcy effective. Cependant, pour des fluides fortement rhéofluidifiants ( $n < 0.65$ ) les résultats expérimentaux dévient des prédictions de cette loi. Le domaine de validité de la loi de Darcy effective est donc limité aux fluides faiblement rhéofluidifiants. Malgré cette limitation, celle-ci est beaucoup utilisée à cause de sa simplicité et le fait qu'elle peut être obtenue sans fixer de modèle pour la viscosité.

Pour des fluides fortement rhéofluidifiants, il est nécessaire de calculer la loi de Darcy en tenant compte du profil de l'écoulement non-newtonien. Ce profil a été calculé ici en supposant un modèle en loi de puissance pour la viscosité. La loi de Darcy non-newtonienne ainsi obtenue décrit bien le comportement des fluides fortement rhéofluidifiants.

Une autre interprétation de données similaires à celles obtenues dans les solutions de Xanthane a été donnée par Kawaguchi *et al.* [48]. Ces auteurs décrivent la dépendance de  $V$  par rapport au gradient de pression  $\nabla p$  (cf figure 7.2 b) par une fonction linéaire qui ne passe pas par zéro. Ils expliquent ce fait par l'existence d'un gradient de pression critique au dessus duquel les doigts commencent à croître. Ceci implique l'existence d'un seuil d'écoulement. Un tel seuil n'existe pas pour les solutions de Xanthane que nous avons étudiées et son existence semble peu probable pour les solutions utilisées par Kawaguchi *et al.* [48]. Dans ce chapitre, nous avons montré que la forme de la fonction  $V(\nabla p)$  peut être entièrement décrite par une viscosité qui dépend du cisaillement. L'effet d'un seuil d'écoulement sur l'instabilité de Saffman-Taylor sera étudié dans le chapitre 10.

# Chapitre 8

## Sélection des doigts dans un fluide faiblement rhéofluidifiant

Dans ce chapitre, nous discuterons le mécanisme de sélection des doigts dans un fluide rhéofluidifiant. Pour cela, nous étudierons la largeur relative des doigts visqueux  $\lambda$  en fonction de leur vitesse  $U$ , dans une cellule de Hele-Shaw de géométrie donnée, dans des solutions de Xanthane de différentes concentrations.

Nous modifions le paramètre de contrôle  $1/B$  afin de tenir compte du caractère rhéofluidifiant des solutions. Les résultats obtenus pour la largeur relative seront ensuite tracés en fonction de ce paramètre de contrôle modifié. Ils pourront ainsi être comparés, d'une part, aux résultats classiques de McLean et Saffman [64] et d'autre part aux théories de Ben Amar et Corvera Poiré [4, 5, 23] qui traitent l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides rhéofluidifiants. Ceci permettra de comprendre le mécanisme de sélection pour les fluides faiblement rhéofluidifiants. Pour les fluides fortement rhéofluidifiants, le mécanisme de sélection ne pourra pas être expliqué dans le cadre de cette étude. Ce problème sera traité dans le chapitre suivant. Les résultats de ce chapitre se trouvent aussi dans Lindner *et al.* [56, 59, 60].

### 8.1 La largeur relative en fonction de la vitesse

Nous mesurons la largeur relative des doigts en fonction de leur vitesse pour différentes concentrations de Xanthane. Afin de modifier le caractère rhéofluidifiant des solutions, nous faisons varier cette concentration de 50 ppm à 1750 ppm. Les expériences sont effectuées dans une cellule de Hele-Shaw rectangulaire de largeur  $W = 4$  cm et d'épaisseur  $b = 0.25$  mm. On peut voir les résultats pour les solutions de Xanthane ainsi que pour de l'eau pure sur la figure 8.1. On constate que la largeur des doigts décroît avec leur vitesse



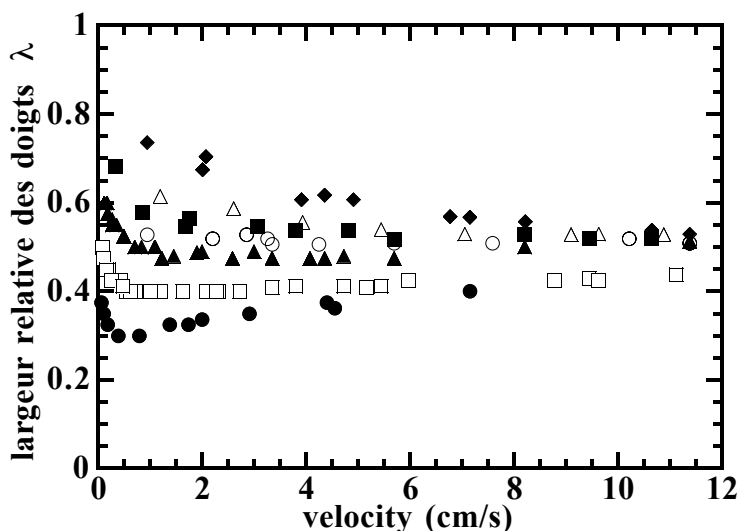


FIG. 8.1: *Largeur relative des doigts d'air en fonction de leur vitesse en propagation dans de l'eau (◆) et dans des solutions de Xanthane de 50 ppm (△), 100 ppm (■), 200 ppm (○), 500 ppm (▲), 1000 ppm (□) et 1750 ppm (●).*

comme pour les fluides newtoniens. La largeur relative des doigts dans les solutions de Xanthane est cependant plus faible que dans l'eau, à vitesses égales. De plus, les doigts deviennent plus fins quand la concentration en polymères des solutions augmente, donc quand le caractère rhéofluidifiant des solutions devient plus important. Notons qu'on voit sur la figure 8.1 une augmentation de la largeur relative des doigts à haute vitesse pour les solutions de Xanthane de concentration élevée. Cette augmentation sera discutée en détail plus tard.

Notons que la limite de  $\lambda = 0.5$  à vitesse élevée pour les fluides classiques ne peut pas être observée lors de la présence d'une quantité d'impuretés même petite, dans la cellule. Ces impuretés entraînent une limite plus élevée de  $\lambda$  qui se trouve autour de  $\lambda = 0.6$  [13]. La même chose se produit pour les solutions de Xanthane où, surtout à faible concentration un largeur des doigts plus importante peut être observée. Ceci demande de manipuler dans des cellules extrêmement propres et de vérifier de temps en temps si la limite classique de  $\lambda = 0.5$  est obtenue pour de l'eau pure. Les résultats montrés sur la figure 8.1 sont obtenus de cette façon.

## 8.2 La largeur relative en fonction de $1/B$

Pour pouvoir comparer les résultats expérimentaux obtenus dans les solutions de Xanthane aux résultats classiques obtenues dans les fluides newtoniens, il est nécessaire de

pouvoir tracer la largeur relative  $\lambda$  obtenue dans les expériences en fonction du paramètre de contrôle de l'instabilité  $1/B = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)^2$ . Ceci demande d'adapter ce paramètre de contrôle, introduit par Saffman et Taylor [76] pour les fluides newtoniens, au cas des fluides non-newtoniens. Pour cela, nous tenons compte du caractère rhéofluidifiant des solutions en remplaçant  $\eta$  par la viscosité non-newtonienne  $\eta(\dot{\gamma})$  dans l'expression de  $1/B$ . Une telle approche a aussi été proposée par Van Damme *et al.* [92]. Nous utilisons le modèle en loi de puissance pour décrire le comportement de cette viscosité non-newtonienne  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équ. (2.14)). Les paramètres  $n$  et  $k_1$  utilisés pour les différentes concentrations sont donnés dans le tableau 5.1. Le paramètre de contrôle s'exprime maintenant de la façon suivante :

$$1/B = 12 \left(\frac{W}{b}\right)^2 \frac{U k_1 \dot{\gamma}(U)^{n-1}}{\sigma} \quad (8.1)$$

où le cisaillement moyen dans la cellule  $\dot{\gamma}(U)$  pour une vitesse du doigt donnée est déterminé d'après la formule :  $\dot{\gamma} = \frac{U}{b} \frac{2(1+2n)}{1+n}$  (équ. (7.6)) obtenue au chapitre précédent à partir d'un profil d'écoulement non-newtonien. Nous déterminons la tension de surface  $\sigma$  à l'aide de la méthode de la goutte pendante [1]. Elle est indépendante de la concentration des solutions et on trouve une valeur de  $\sigma = 72 \pm 2$  mN/m très proche de celle de l'eau ( $\sigma = 72.3$  mN/m). Ceci signifie que l'adsorption du polymère ou des impuretés présentes dans les solutions à la surface libre de la solution est négligeable.

Il est maintenant possible de tracer les résultats de la largeur relative des doigts  $\lambda$  obtenus dans les solutions de Xanthane en fonction de ce paramètre  $1/B$  (équation (8.1)) et de les comparer ainsi aux résultats numériques de McLean et Saffman [64] pour les fluides newtoniens (Fig. 8.2). On constate que les résultats pour les faibles concentrations en Xanthane coïncident avec la courbe maîtresse des fluides newtoniens. Les résultats pour les concentrations plus élevées commencent à s'écarter de cette courbe. L'écart est faible à  $1/B$  petit et augmente lorsque  $1/B$  augmente. Pour  $1/B$  grand, les valeurs de  $\lambda$  semblent se stabiliser sur un plateau avec  $\lambda$  plus petit que la limite classique de  $\lambda = 0.5$ . Comme déjà évoqué, cet écart par rapport à la courbe classique vers des valeurs plus petites, devient de plus en plus important quand le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente. De plus, on remarque que cet écart augmente de façon continue avec la concentration en polymères des solutions.

Il est intéressant de noter que les doigts observés dans un fluide rhéofluidifiant sont stables jusqu'à des  $1/B$  très élevés. Nous avons fait des expériences jusqu'à  $1/B = 12000$  sans voir de déstabilisation des doigts. Dans les fluides non-newtoniens par contre, une déstabilisation des doigts par une instabilité secondaire ("tip splitting") intervient, selon le niveau de bruit vers  $1/B = 5000$  [66] (cf paragraphe 1.5).

Des doigts avec une largeur relative plus petite que la limite newtonienne peuvent aussi

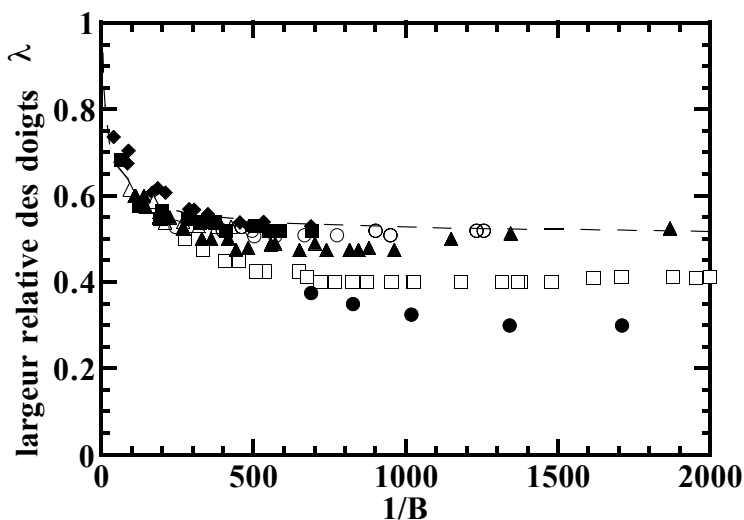


FIG. 8.2: Largeur relative des doigts en fonction de  $1/B$  pour de l'eau ( $\blacklozenge$ ) et les solutions de Xanthane de 50 ppm ( $\blacktriangle$ ), 100 ppm ( $\blacksquare$ ), 200 ppm ( $\bullet$ ), 500 ppm ( $\blacktriangle$ ), 1000 ppm ( $\square$ ) et 1750 ppm ( $\bullet$ ).

être observés dans des fluides newtoniens lorsque le doigt est perturbé par la présence d'une anisotropie dans le système [73, 25, 99]. Une telle perturbation du doigt détruit systématiquement et indépendamment de la nature exacte de cette perturbation, la limite classique de  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse. Si celle-ci introduit une direction de croissance préférentielle selon l'axe de la cellule dans le système, on observe la formation de doigts avec une largeur relative  $\lambda < 0.5$  qui tend vers zéro quand  $1/B$  tend vers l'infini. La sélection singulière du doigt  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse, due à la tension de surface (cf paragraphe 1.4) s'avère donc très fragile. De telles observations ont par exemple été faites par M. Rabaud *et al.* [73, 25] qui ont perturbé le système à l'aide d'une rayure sur les plaques de la cellule dans la direction de propagation du doigt.

Un phénomène similaire est très probablement aussi la cause de l'amincissement des doigts dans les solutions de Xanthane. Etant donné le caractère rhéofluidifiant des solutions, un cisaillement local élevé conduit à une viscosité localement faible. Les régions de cisaillement élevé sont les régions de vitesse élevée du fluide cisillant dans la cellule de Hele-Shaw. Ces régions de faible viscosité se trouvent essentiellement à la pointe du doigt, comme le montrent explicitement les simulations numériques de Kondic *et al.* [50] en géométrie radiale. Une anisotropie longitudinale similaire à celles des rayures dans les plaques est ainsi créée et pourrait expliquer la formation de doigts fins observées dans les fluides rhéofluidifiants.

## 8.3 Prédiction théoriques

Nous allons maintenant discuter les prévisions théoriques existantes. Une analyse de stabilité linéaire de l'instabilité de Saffman-Taylor pour un fluide rhéofluidifiant a été menée par Wilson [96] et Kondic *et al.* [50]. Dans ces deux analyses, une loi de Darcy de type non-newtonien similaire à celle discutée au chapitre précédent (équation (7.5)) est utilisée. L'analyse de Kondic *et al.* en géométrie radiale indique la suppression du "tip splitting" dans les fluides rhéofluidifiants, ce qui est en accord avec la formation de doigts plus stables observés dans nos expériences en géométrie linéaire. Un tel comportement est aussi observé dans leurs simulations numériques de l'évolution des doigts dans une géométrie radiale citées ci-dessus.

Une analyse non-linéaire de la largeur des doigts pour un fluide rhéofluidifiant a été réalisée par Ben Amar [4] et Corvera Poiré et Ben Amar [5, 23]. Dans le calcul de Ben Amar [4], les conditions aux bords à l'interface du doigt sont changées par rapport à celles qui s'appliquent dans le cas d'un fluide newtonien. Plus précisément, la relation entre la vitesse du doigt et le gradient de pression local (la condition de Stefan, équation (1.5)) est modifiée selon le modèle  $\eta$  et s'écrit :  $U_n \propto |\nabla p|_n^{\eta_n}$  tandis que le saut de pression à l'interface (équation (1.6)) est inchangé par rapport à celui de l'analyse classique. Ces conditions aux bords s'appliquent au cas d'un fluide rhéofluidifiant dans le cadre du modèle en loi de puissance pour la viscosité. L'équation du mouvement n'est pas modifiée, ce qui permet de traiter le problème dans un champ de pression laplacien.

Le caractère rhéofluidifiant du fluide est pris en compte dans les équations du mouvement des références [5, 23]. Cette approche est plus complexe que celle du modèle  $\eta$ , mais semble mieux tenir compte de l'hydrodynamique dans les fluides rhéofluidifiants. Pour cela, Corvera et Ben Amar utilisent une loi de puissance du type :  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équation (2.14)) pour la viscosité. De plus, elles utilisent une loi de Darcy effective :  $V = -\frac{b^2}{12\eta(\dot{\gamma})} \nabla p$  (équation (7.3)) que nous avons discutée dans le chapitre précédent. Comme la relation entre le gradient de pression et la vitesse découlant de cette loi de Darcy n'est pas linéaire pour un fluide rhéofluidifiant, le champ de pression qui gouverne l'instabilité n'est plus laplacien. Ceci complique considérablement les analyses théoriques dans les fluides rhéofluidifiants. Dans [5, 23], une transformation conforme permet de retrouver le caractère laplacien des équations et de résoudre le problème. Ces deux analyses permettent d'obtenir une solution numérique pour  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  pour des  $n$  proche de 1, c'est-à-dire pour des fluides faiblement rhéofluidifiants. C'est aussi dans cette limite que la loi de Darcy effective utilisée est valable comme nous l'avons montré au paragraphe 7.3.

Nous allons maintenant décrire les résultats généraux de ces théories et, ensuite faire

une comparaison avec nos résultats expérimentaux. Les solutions  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  obtenues avec ces deux théories sont présentées sur la figure 8.3. On constate que les

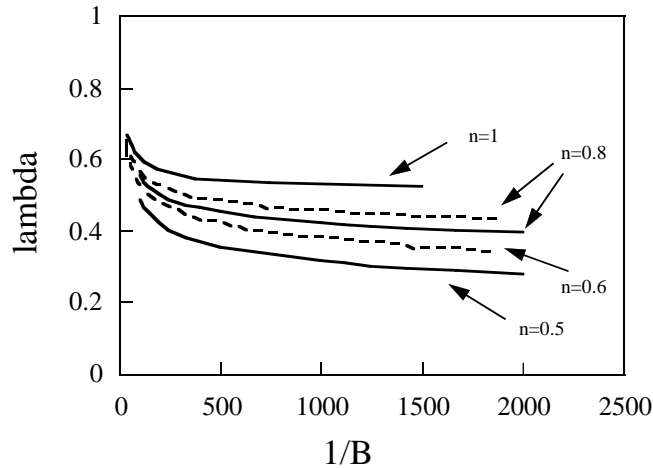


FIG. 8.3: Prédiction théorique de la largeur relative des doigts en fonction de  $1/B$  du modèle  $\eta$  [4] (—) et de l'analyse de Corvera Poiré et Ben Amar [5, 23] (- -) pour  $n=1$  (McLean et Saffman [64]),  $n=0.8$ ,  $n=0.6$  et  $n=0.5$ .

solutions obtenues par Ben Amar [4] dans le cadre du modèle  $\eta$  prédisent à  $n$  égal des largeurs relatives de doigts plus petites que les solutions obtenues par l'analyse de Corvera Poiré et Ben Amar [5, 23] dans laquelle les équations de mouvement ont été modifiées. Malgré cette différence quantitative, le comportement général de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  est similaire dans les deux cas. Les théories prédisent la formation de doigts avec une largeur relative plus faible que dans les fluides newtoniens. L'écart par rapport aux résultats classiques est faible pour des  $1/B$  petits et devient plus important quand  $1/B$  augmente. Dans la limite où  $1/B$  tend vers l'infini,  $\lambda$  tend vers zéro pour toutes les solutions. Pour une valeur de  $1/B$  donnée, les doigts deviennent de plus en plus fins quand le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente.

Les théories prédisent donc la formation de doigts avec  $\lambda < 0.5$  à  $1/B$  élevé quantitativement en bon accord avec les observations expérimentales. Le fait que  $\lambda$  semble se stabiliser sur un plateau pour  $1/B$  grand dans les expériences n'est cependant pas reproduit par les théories où  $\lambda$  tend vers zéro pour  $1/B$  grand.

Sur la figure 8.4 (a) on voit une comparaison quantitative entre les solutions théoriques du modèle  $\eta$  [4] et les résultats expérimentaux. Pour cette comparaison, il faut adopter la

même définition du paramètre  $1/B$  que celle utilisée dans l'étude théorique pour représenter les résultats expérimentaux :

$$\left(\frac{1}{B}\right)_{\text{modèle } \eta} = \frac{\mu_0 U}{\sigma} \left(\frac{W}{b}\right)^2 \quad (8.2)$$

La viscosité  $\mu_0$  suit de la définition du modèle en loi de puissance utilisé pour l'analyse théorique :  $\eta = \mu_0 \left(\frac{U}{U_0}\right)^{1-\eta_t}$  où  $U_0 = 1$  cm/s [6]. Une comparaison avec notre définition du modèle en loi de puissance :  $\eta = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  et  $\dot{\gamma} = 3U/b$  permet d'exprimer  $\mu_0$  et  $\eta_t$  en fonction des paramètres  $k_1$  et  $n$  que nous avons déterminés pour les solutions de Xanthane utilisées (cf tableau 5.1) :

$$\mu_0 = k_1 \left(\frac{3U_0}{b}\right)^{n-1} \quad (8.3)$$

$$\eta_t = 2 - n \quad (8.4)$$

Les résultats expérimentaux pour  $\lambda$  peuvent ainsi être tracés en fonction de  $\left(\frac{1}{B}\right)_{\text{modèle } \eta}$  et être comparés aux solutions théoriques pour deux valeurs particulières de  $n$ . On constate que la théorie prédit des largeurs de doigts nettement plus petites que celles observées dans les expériences.

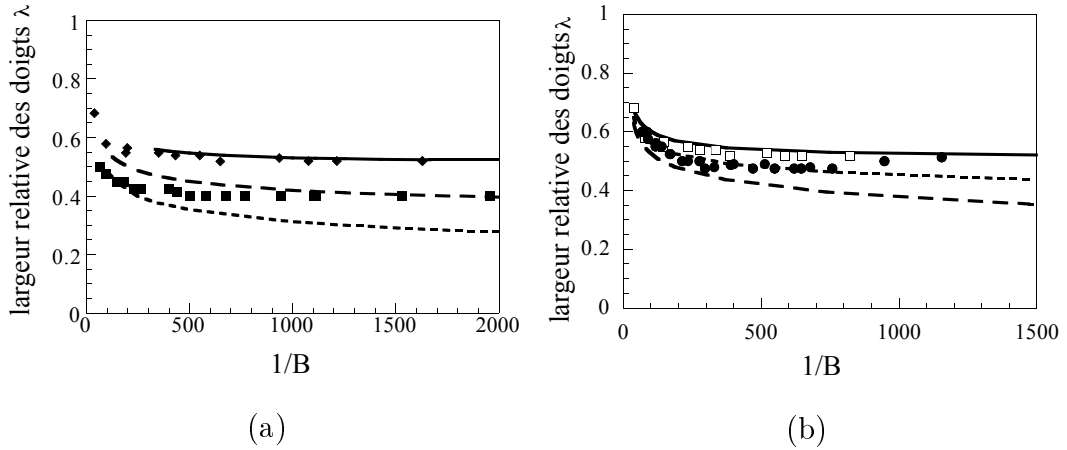


FIG. 8.4: Prédiction théorique pour la largeur relative des doigts en fonction de  $1/B$  a) du modèle  $\eta$  [4] pour  $n=1$  (McLean et Saffman [64]) (—),  $n=0.8$  (---) et  $n=0.5$  (- -) et résultats expérimentaux pour les solutions de Xanthane de 100 ppm (◆) ( $n=0.82$ ) et 1000 ppm (■) ( $n=0.46$ ). b) de l'analyse de Corvera Poiré et Ben Amar [5, 23] pour  $n=1$  (McLean et Saffman [64]) (—),  $n=0.8$  (- -) et  $n=0.6$  (- -) et résultats expérimentaux pour les solutions de Xanthane de 100 ppm (□) ( $n=0.82$ ) et 500 ppm (●) ( $n=0.61$ ).

La figure 8.4 (b) montre une comparaison de nos résultats expérimentaux avec les solutions théoriques de l'analyse de Corvera Poiré et Ben Amar [5, 23]. Ces valeurs théoriques

de  $\lambda$  sont données en fonction de :

$$\left(\frac{1}{B}\right)_{\text{theor}} = 12 \frac{\eta}{\sigma} \left(\frac{a}{b}\right)^2 Q_0 / \lambda \quad (8.5)$$

où  $a = W/2$ ,  $Q_0 = V_\infty \left(\frac{V_\infty}{U}\right)^{-\alpha/2}$  avec  $V_\infty \sim U\lambda$  [22] et  $\eta$  est la viscosité rhéofluidifiante qui est comme auparavant décrite par le modèle en loi de puissance :  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$ . Il est donc possible, en multipliant  $\left(\frac{1}{B}\right)_{\text{theor}}$  par  $4\lambda^{\alpha/2}$  de remonter à la définition de  $1/B$  (équation (8.1)) déjà utilisée dans le paragraphe précédent :

$$\frac{1}{B} = 4\lambda^{\alpha/2} \left(\frac{1}{B}\right)_{\text{theor}} = 12 \left(\frac{W}{b}\right)^2 \frac{U k_1 \dot{\gamma}(U)^{n-1}}{\sigma} \quad (8.6)$$

où nous utilisons maintenant  $\dot{\gamma}(U) = 3U/b$  pour rester dans le cadre de l'approximation de la loi de Darcy effective :  $V = -\frac{b^2}{12\eta(\dot{\gamma})} \nabla p$  (équation (7.3)) utilisée pour le traitement théorique. Notons que l'exposant  $\alpha$  du modèle en loi de puissance utilisé par Corvera Poiré et Ben Amar est égal à :  $\alpha = -n + 1$ . La comparaison entre les résultats expérimentaux et les solutions théoriques (Fig. 8.4 (b)) montre que l'analyse de Corvera Poiré et Ben Amar prédit aussi des valeurs de  $\lambda$  plus petites que celles observées dans nos expériences. Mais cet écart entre les résultats expérimentaux et les solutions théoriques est plus petit dans le cadre de cette théorie qu'avec le modèle moins réaliste  $\eta$ .

En conclusion, les théories de Ben Amar et Corvera Poiré [4, 5, 23] prédisent des valeurs  $\lambda < 0.5$  à  $1/B$  élevé en accord qualitatif avec nos observations expérimentales. Les théories prédisent cependant que  $\lambda \rightarrow 0$  pour des  $1/B$  grands, ce qui n'est pas observé dans les expériences où  $\lambda$  se stabilise sur un plateau à  $1/B$  élevé. Une comparaison quantitative indique que les valeurs de  $\lambda$  prédites par la théorie sont nettement plus petites que celles observées expérimentalement. Cet écart est plus faible pour les théories [5, 23], pour lesquelles les équations du mouvement ont été modifiées que pour le modèle  $\eta$  [4].

Une explication possible de ce désaccord est l'utilisation du modèle en loi de puissance dans les analyses théoriques. Comme nous l'avons discuté au paragraphe 5.1.2, ce modèle ne tient pas compte des valeurs constantes de la viscosité non-newtonienne à très bas et à très haut cisaillement et n'est donc valable que dans une gamme de cisaillement limitée. Cette gamme est très petite pour des fluides faiblement rhéofluidifiants et devient de plus en plus étendue à mesure que le caractère rhéofluidifiant des fluides augmente (cf tableau 5.1). La théorie de M. Ben Amar et de E. Corvera Poiré n'est valable que dans le domaine des fluides faiblement rhéofluidifiants où la viscosité expérimentale est justement mal décrite par le modèle en loi de puissance. A faible et à fort cisaillement, le modèle surestime le caractère rhéofluidifiant des fluides ce qui pourrait être la cause des largeurs de doigts trop petites prédits par ces modèles.

## 8.4 Conclusion

Dans les fluides rhéofluidifiants, on peut observer des doigts dont la largeur relative  $\lambda$  à haute vitesse est nettement plus petite que la limite classique  $\lambda = 0.5$  obtenue avec les fluides newtoniens. Cet amincissement des doigts peut s'expliquer par la formation d'une direction préférentielle de croissance dans les systèmes utilisant un fluide rhéofluidifiant. Cette direction préférentielle est engendrée par une zone locale de faible viscosité devant la pointe du doigt, là où la vitesse dans le fluide est élevée et qui se forme par suite du caractère rhéofluidifiant des solutions.

Le paramètre de contrôle de l'instabilité  $1/B$  est modifié afin de l'adapter au cas des fluides non-newtoniens en remplaçant  $\eta$  par la viscosité non-newtonienne  $\eta(\dot{\gamma})$  qui est fonction du cisaillement. Les résultats expérimentaux concernant la largeur relative  $\lambda$  des doigts obtenue dans les solutions de Xanthane ont ensuite été tracés en fonction de ce paramètre  $1/B$ .

Ce faisant, on retrouve la courbe maîtresse de McLean et Saffman [64] concernant les fluides newtoniens pour les fluides faiblement rhéofluidifiants ( $n > 0.65$ ). C'est aussi dans cette limite que la loi de Darcy effective :  $V = -\frac{b^2}{12\eta(\dot{\gamma})}\nabla p$  (équation (7.3)), calculée au chapitre précédent, est valable. Cette loi de Darcy effective est obtenue en modifiant la loi de Darcy newtonienne (équation (1.1)) de la même façon que le paramètre de contrôle  $1/B$  : la viscosité  $\eta$  est remplacée par  $\eta(\dot{\gamma})$ .

Pour les fluides fortement rhéofluidifiants, les résultats s'écartent de cette courbe classique et des doigts plus fins sont observés. Les doigts deviennent de plus en plus fins à mesure que le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente. Dans ce domaine, la loi de Darcy effective n'est elle aussi, plus valable. Une comparaison avec des prédictions théoriques prenant mieux en compte l'hydrodynamique de ces fluides indique un bon accord qualitatif. Ces prédictions sont d'une part, les simulations numériques de Kondic *et al.* qui montrent la suppression du "tip splitting" et par conséquent la formation de doigts stables à très haute vitesse dans les fluides rhéofluidifiants en accord avec nos observations expérimentales. D'autre part, des analyses numériques de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  effectuées par Ben Amar et Corvera Poiré [4, 5, 23] prédisent des valeurs de  $\lambda$  plus petites que 0.5 à  $1/B$  grand en accord avec les observations expérimentales. Ces théorie prédisent cependant que la largeur relative  $\lambda$  tend vers zéro pour des  $1/B$  grands. Ceci n'est pas observé dans nos expériences où la largeur relative semble se stabiliser sur un plateau à  $1/B$  grand. Les valeurs pour  $\lambda$  observées expérimentalement sont ainsi plus élevées que la prédiction théorique. Les théories existantes ne permettent donc pas d'expliquer le mécanisme exact de sélection des doigts fins dans le cas d'un fluide fortement rhéofluidifiant. L'étude de la sélection des doigts dans un fluide fortement rhéofluidifiant sera approfondie dans le



chapitre suivant.

# Chapitre 9

## Sélection des doigts dans les fluides fortement rhéofluidifiants

Dans le chapitre précédent, nous avons montré qu'en passant des fluides faiblement rhéofluidifiants aux fluides fortement rhéofluidifiants, on passe continûment des résultats classiques obtenus avec les fluides newtoniens à des doigts de plus en plus fins. Les théories existantes ne permettent pas de rendre compte de la largeur exacte des doigts plus fins observés dans ces expériences. La théorie ne révèle donc pas le mécanisme de sélection exact mis en jeu dans les fluides fortement rhéofluidifiants.

Dans ce chapitre, nous allons faire varier la géométrie de la cellule de Hele Shaw pour obtenir plus d'informations sur le mécanisme de sélection des doigts dans ce domaine. Les résultats ainsi obtenus rappellent certains résultats obtenus pour des doigts "anormaux" dans les fluides newtoniens. Ces derniers sont par exemple observés dans une cellule de Hele-Shaw dont les plaques présentent une rayure selon l'axe de la cellule. Cette perturbation crée une anisotropie comparable à celle formée dans les fluides rhéofluidifiants lors des expériences de digitation visqueuse (paragraphe 8.2). Dans le cas des doigts anormaux, on peut montrer que le rayon de courbure à la pointe des doigts est sélectionné en fonction de leur vitesse. Ceci a motivé une étude de ce rayon de courbure pour les résultats obtenus dans les solutions fortement rhéofluidifiantes de Xanthane. Dans ce chapitre, nous allons comparer les résultats de cette étude aux résultats obtenus pour les doigts anormaux.

### 9.1 Etude expérimentale

De nouveau, nous mesurons la largeur des doigts en fonction de leur vitesse pour différentes cellules de Hele Shaw. La largeur du canal varie de  $W = 2$  cm à  $W = 8$  cm et l'épaisseur de  $b = 0.25$  mm à  $b = 1$  mm. Comme auparavant nous étudions des solutions

de Xanthane à différentes concentrations variant de 200 ppm jusqu'à 3000 ppm.

La figure 9.1 montre les résultats obtenus pour  $\lambda$  en fonction de la vitesse pour une concentration de 1000 ppm et trois largeurs différentes du canal. On constate que la

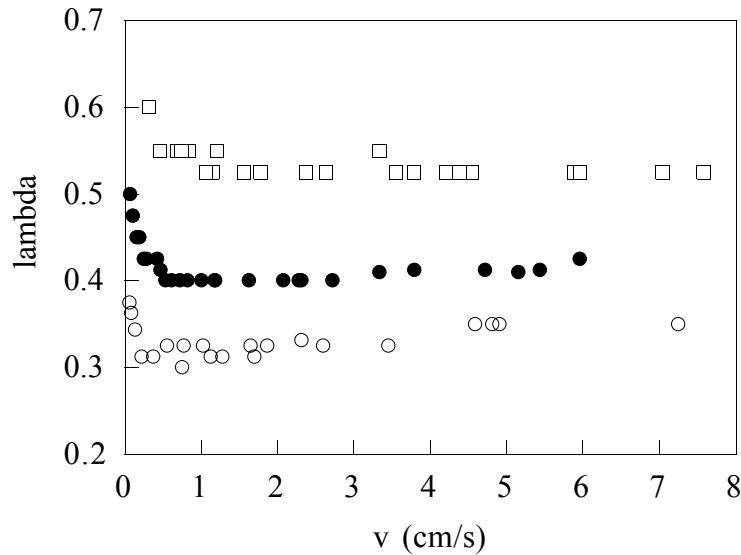


FIG. 9.1: *Largeur relative des doigts en fonction de leur vitesse pour  $W = 2$  cm ( $\square$ ),  $W = 4$  cm ( $\bullet$ ) et  $W = 82$  cm ( $\circ$ ). La largeur relative se stabilise à vitesse élevée sur une valeur constante qui dépend de la largeur de la cellule.*

largeur relative des doigts en fonction de leur vitesse varie avec la largeur du canal  $W$  et ne se stabilise pas sur le même plateau pour des vitesses élevées. La largeur relative diminue quand la largeur du canal augmente. Pour un fluide newtonien, on observe bien une variation de  $\lambda$  avec  $W$  mais seulement pour de faibles vitesses. Dans cette région,  $\lambda$  diminue rapidement avec  $1/B$ , qui est proportionnel à  $W^2$ . Pour de faibles vitesses, une augmentation de  $W$  entraîne donc une diminution de  $\lambda$ . Pour des vitesses élevées par contre, la largeur relative des doigts  $\lambda$  se stabilise à une valeur indépendante de  $W$  :  $\lambda = 0.5$ . Le mécanisme de sélection dans les fluides rhéofluidifiants est donc fondamentalement différent du mécanisme classique. Ces observations sont à mettre en parallèle avec les résultats obtenus pour des doigts anormaux observés sous certaines conditions dans des fluides newtoniens [73, 25, 99] qui vont être présentés dans le paragraphe suivant.

## 9.2 Les doigts anormaux dans les fluides newtoniens

Un exemple de doigts anormaux a été étudié par exemple par M. Rabaud *et al.* [73] dans une cellule de Hele-Shaw dont les plaques présentent une rayure selon l'axe du canal.

Dans ce système, ils ont observés des doigts ayant une largeur relative  $\lambda$  beaucoup plus

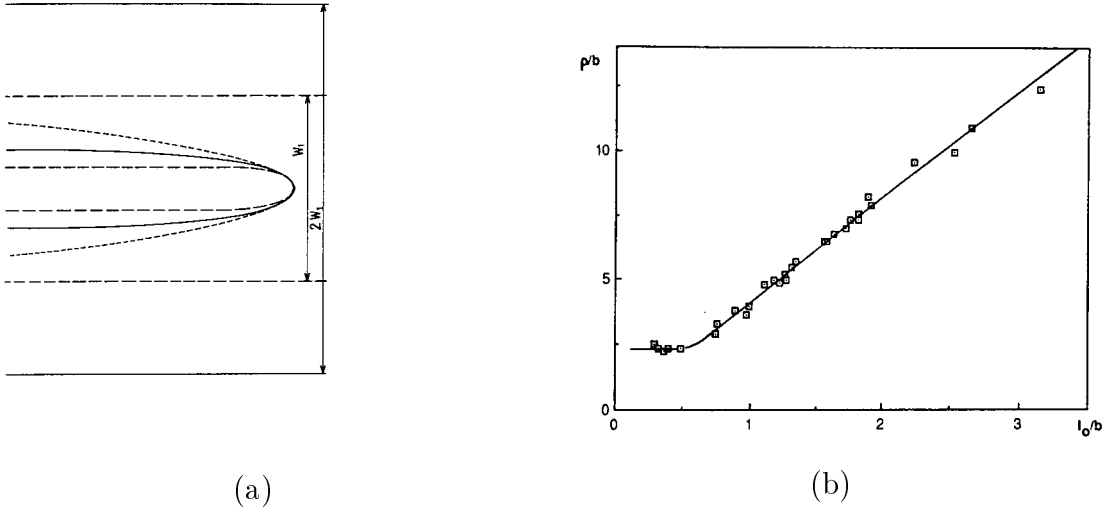


FIG. 9.2: a) Trois doigts de même vitesse, dans des canaux de même épaisseur et de largeurs différentes d'après [73] :  $W = W_1$ ,  $\lambda = 0.23$  (---),  $W = 2W_1$ ,  $\lambda = 0.165$  (—) et  $W \rightarrow \infty$ ,  $\lambda \rightarrow 0$  (- - -). Le rayon de courbure des trois doigts est identique, tandis que leur largeur varie avec la largeur de la cellule. b) Le rayon de courbure adimensionné  $\rho/b$  en fonction de  $l_0/b$  pour  $W = 12$  cm et  $b = 0.1$  cm d'après [73].  $\rho$  est une fonction linéaire de  $l_0$  dans une certaine gamme de  $l_0$  et sature ensuite à une valeur constante.

petite que 0.5 à haute vitesse. Les rayures dans les plaques créent une perturbation locale à la pointe du doigt. La sélection singulière du doigt  $\lambda=0.5$  à haute vitesse, due à la tension interfaciale (cf paragraphe 1.4), ne tient plus et tout le continuum des solutions de Saffman-Taylor, calculé en l'absence de tension devient alors accessible :  $\lambda$  décroît avec la vitesse et prend des valeurs inférieures à 0.5 à haute vitesse. L'expérience montre que la forme des doigts obtenus à haute vitesse pour lesquels  $\lambda < 0.5$  est bien décrite par les résultats analytiques de Saffman Taylor (cf. équation 1.15) dans lesquels la tension de surface a été négligée. Rabaud *et al.* montrent que c'est le rayon de courbure à la pointe des doigts qui est sélectionné en fonction de la vitesse. La figure 9.2 (a) montre que des doigts de même vitesse, obtenus dans des cellules de même épaisseur mais de largeurs différentes, ont tous le même rayon de courbure à la pointe du doigt mais différentes largeurs. La formule analytique de Saffman et Taylor donnant la forme des doigts (équation (1.15)) conduit à une relation entre le rayon de courbure à la pointe et la largeur relative du doigt. Une approximation parabolique de cette formule dans la région de la pointe du doigt donne le rayon de courbure  $\rho$  :

$$\rho = \frac{\lambda^2 W}{\pi(1 - \lambda)} \quad (9.1)$$

L'équation 9.1 montre que  $\lambda$  s'ajuste en fonction du rayon de courbure sélectionné et de la largeur du canal. On trouve donc des  $\lambda$  différents pour des largeurs de canal  $W$  différentes comme le montre l'expérience.

L'expérience montre que le rayon de courbure adimensionné  $\rho/b$  est sélectionné en fonction du nombre capillaire  $Ca = \frac{\eta U}{\sigma}$ . Les résultats pour une géométrie donnée sont montrés sur la figure 9.2 (b). Le rayon de courbure adimensionné  $\rho/b$  est donc une fonction linéaire de la longueur capillaire adimensionnée  $l_0/b = 1/\sqrt{12Ca}$ .  $\rho$  est proportionnel à  $l_0$  :

$$\rho = \alpha l_0 \quad (9.2)$$

(Notons que la longueur capillaire  $l_0 = \frac{b}{\sqrt{12Ca}}$  utilisée par Rabaud *et al.* [73] diffère d'un facteur  $\frac{\pi}{\sqrt{12}}$  de notre définition  $l_c = \frac{\pi b}{\sqrt{Ca}}$ .) A haute vitesse (donc pour  $l_0$  petit), on observe une saturation de  $\rho/b$ . Cette saturation intervient typiquement pour des valeurs de  $\rho/b$  de l'ordre de 2 ou 3. Elle est expliquée par le fait que le rayon de courbure  $\rho$  devient alors du même ordre de grandeur que le rayon de courbure dans la direction de l'épaisseur de la cellule ( $\sim b/2$ ). Le système dans ces conditions ne peut plus être traité comme un système bidimensionnel, ce que suppose la solution de Saffman-Taylor. Cette saturation est fondamentalement différente de la saturation à  $\lambda = 0.5$  observée pour des systèmes non perturbés. Dans ce dernier cas, il s'agit d'une sélection singulière à haute vitesse d'une solution du système bidimensionnelle due à la tension interfaciale.

Pour pouvoir comparer les résultats obtenus dans le cas des doigts anormaux aux résultats classiques de McLean et Saffman [64], il est utile de pouvoir représenter  $\lambda$  en fonction de  $1/B$ . Des équations 9.1 et 9.2 découle [73] :

$$\lambda = \frac{\pi\alpha\sqrt{B}}{2} \left[ \left[ 1 + \frac{4}{\pi\alpha\sqrt{B}} \right]^{1/2} - 1 \right] \quad (9.3)$$

### 9.3 Les doigts dans les fluides fortement rhéofluidifiants

La dépendance de  $\lambda$  à haute vitesse de la géométrie du canal dans les solutions de Xanthane indique que, ici aussi, le mécanisme de sélection est différent du mécanisme classique. Dans ce paragraphe, nous allons tester si un mécanisme analogue à celui décrit ci-dessus est responsable de la sélection des doigts dans le cas des fluides fortement rhéofluidifiants. Nous allons d'abord comparer les profils expérimentaux des doigts aux prédictions théoriques de Saffman et Taylor (équation (1.15)). Pour cela, le profil des doigts est déduit d'images enregistrées sur magnétoscope au cours des expériences, à l'aide du logiciel "NIH-Image". Les courbes ainsi obtenues sont ensuite importées dans le logiciel "Mathematica" ce qui permet de comparer leur forme à la prédiction théorique de l'équation

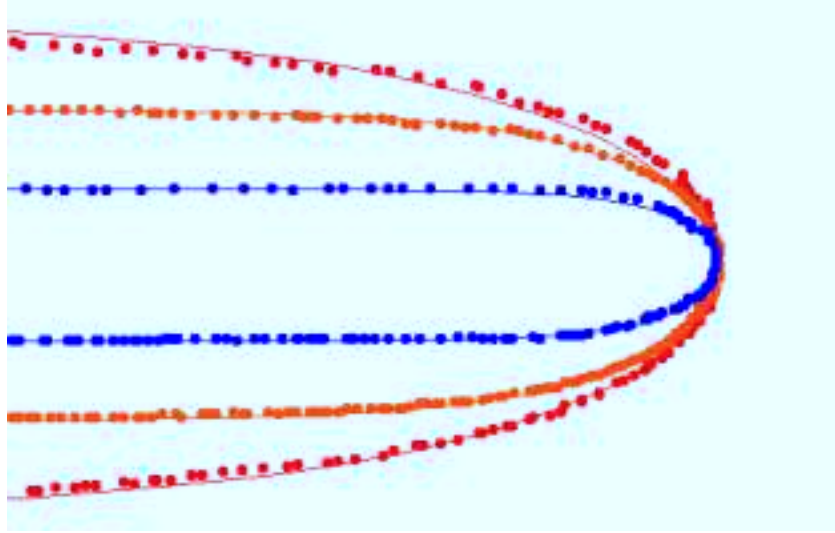


FIG. 9.3: *Forme des doigts dans une solution de Xanthane de 2000 ppm à très faible vitesse. Le doigt le plus fin correspond à  $W = 2$  cm, le doigt au milieu à  $W = 4$  cm et le doigt le plus large à  $W = 8$  cm. Les traits représentent la prédiction de Saffman et Taylor en négligeant la tension de surface (équation (1.15)) pour  $\lambda = 0.56$  (2 cm), 0.49 (4 cm) et 0.38 (8 cm). La forme expérimentale est bien décrite par la prédiction théorique de Saffman et Taylor.*

(1.15) correspondant à la valeur de  $\lambda$  respective. Les résultats pour des doigts à très basse vitesse ( $W = 2$  cm, 4 cm et 8 cm) sont montrés sur la figure 9.3. La forme des doigts est bien décrite par la prédiction théorique de Saffman et Taylor. Des écarts sont observés, mais uniquement pour des  $\lambda$  grands ( $\lambda > 0.65$ ) lorsque la tension de surface ne peut plus être négligée. De telles valeurs de  $\lambda$  sont très rarement observées dans nos expériences et ne se manifestent seulement qu'à très très basse vitesse et dans le canal le plus étroit de  $W = 2$  cm. Par conséquent, elles ne sont pas considérées dans la suite.

Il est maintenant possible de déduire précisément à l'aide de l'équation (9.1) le rayon de courbure à la pointe des doigts à partir de leur largeur relative. La largeur relative est en effet beaucoup plus facile à déduire directement et avec précision des enregistrements que le rayon de courbure. On obtient ainsi  $\rho/b$  en fonction de  $1/\sqrt{12Ca}$  à partir des mesures de la forme  $\lambda(U)$ . Dans l'expression du nombre capillaire,  $\eta$  est, comme dans les analyses précédentes, remplacé par  $\eta(\dot{\gamma})$ . Les résultats pour 1000 ppm et 500 ppm pour  $W = 4$  cm et  $b = 0.25$  mm sont montrés sur les figures 9.4 (a) et 9.4 (b). On observe une gamme de vitesses où la relation entre  $\rho/b$  et  $1/\sqrt{12Ca}$  est linéaire comme pour les doigts anormaux newtoniens. Vers des vitesses élevées et donc des  $1/\sqrt{12Ca}$  petits, on observe

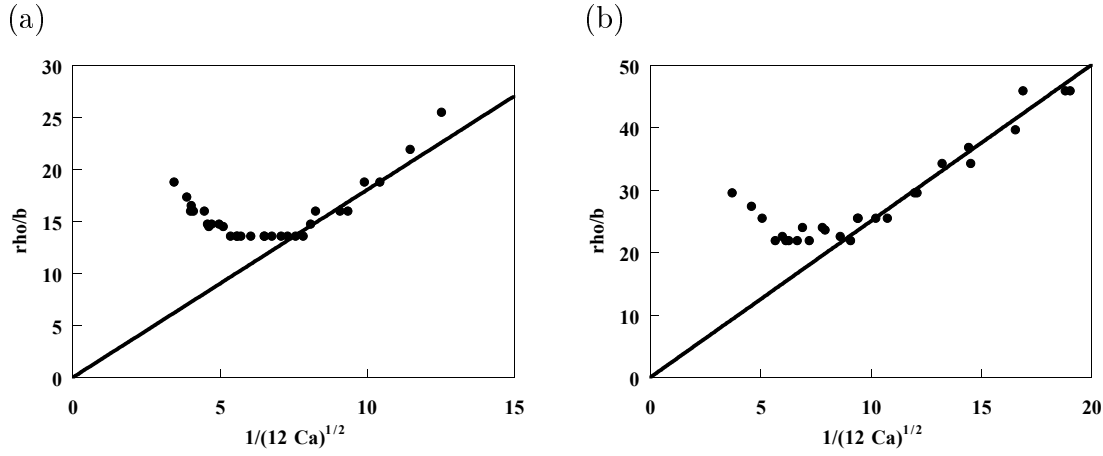


FIG. 9.4:  $\rho/b$  en fonction de  $1/\sqrt{12Ca}$  pour des solutions de Xanthane de 1000 ppm (a) et de 500 ppm (b). A faible vitesse ( $1/\sqrt{12Ca}$  large), la relation entre  $\rho/b$  et  $1/\sqrt{12Ca}$  est linéaire. Vers des vitesses élevées ( $1/\sqrt{12Ca}$  petits), on observe une saturation de  $\rho/b$ .

de même une saturation de  $\rho/b$ . Mais cette saturation intervient à des valeurs de  $\rho/b$  plus élevées que pour les doigts anormaux et on observe de plus une variation de cette valeur de saturation avec la concentration (1000 ppm et 500 ppm). L'origine de la saturation ne semble donc pas être la même pour les doigts anormaux et les doigts obtenus dans les fluides rhéofluidifiants. L'origine de cette saturation sera discutée dans le paragraphe 9.4. Le paramètre  $\alpha$  de la relation  $\rho = \alpha l_0$  (équation (9.2)) se déduit des valeurs de  $\rho/b$  non saturées. On obtient  $\alpha = 2.5$  pour 500 ppm et  $\alpha = 1.8$  pour 1000 ppm. La valeur de  $\alpha$  dépend donc de la concentration des fluides et caractérise ainsi le caractère rhéofluidifiant des solutions.

La relation entre  $\alpha$  et le caractère rhéofluidifiant des solutions peut être quantifiée avec plus de détail dans le cadre du modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équation (2.14)) pour un fluide rhéofluidifiant. L'exposant  $n$  de ce modèle donne une mesure du caractère rhéofluidifiant des solutions. Nous avons déterminé  $\alpha$  pour différentes concentrations dans la géométrie de  $W = 4$  cm et de  $b = 0.25$  mm. Les mesures de  $\alpha$  en fonction de  $n$  sont montrées sur la figure 9.5 pour des concentrations variant de 250 ppm ( $n = 0.727$ ) à 3000 ppm ( $n = 0.269$ ). On constate que la relation entre  $n$  et  $\alpha$  est linéaire et on obtient :

$$\alpha = 4.29 n \quad (9.4)$$

Il devient maintenant possible de déduire la valeur de  $\alpha$  à partir de la pente de la viscosité du fluide rhéofluidifiant.

En connaissant la valeur de  $\alpha$ , on peut tracer les courbes de la forme  $\lambda(1/B)$  (équation (9.3)). Les résultats expérimentaux pour une concentration donnée mais des géométries

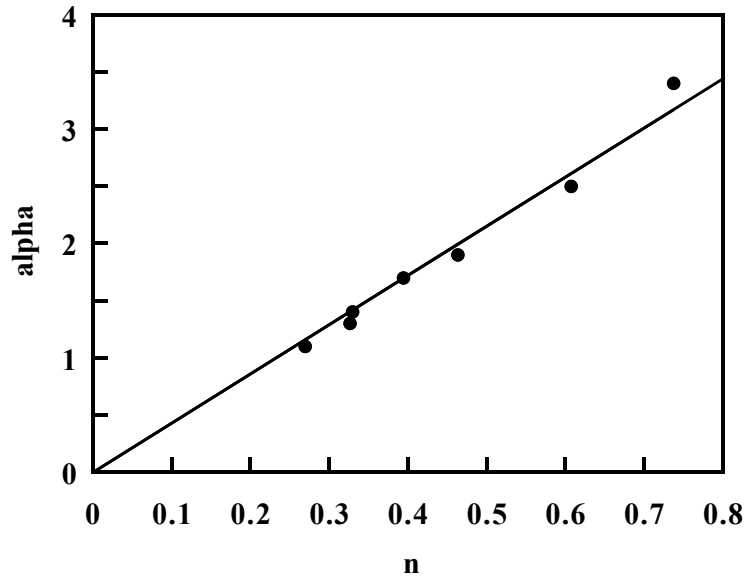


FIG. 9.5: Le paramètre  $\alpha$  de l'équation (9.2) en fonction de l'exposant  $n$  du modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  de la viscosité. On constate que  $\alpha$  est une fonction linéaire de  $n$ .

différentes devraient tous se placer sur cette courbe. Sur les figures 9.6 (a) et 9.6 (b), les résultats expérimentaux  $\lambda$  pour les concentrations de 1000 ppm et 500 ppm sont reportés en fonction de  $1/B$ . Comme auparavant, on tient compte du caractère rhéofluidifiant de la viscosité pour déterminer  $1/B$ . On observe que, pour chaque géométrie, le début de la courbe des résultats expérimentaux  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  (correspondant à des  $1/B$  faibles) se met à l'échelle avec le début des courbes obtenues pour les autres géométries. Les résultats expérimentaux  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  pour une géométrie donnée s'écartent respectivement de cette courbe universelle à des valeurs plus élevées de  $1/B$  et se stabilisent sur des plateaux. Les valeurs de  $\lambda$  qui forment la courbe maîtresse en fonction de  $1/B$  correspondent à des rayons de courbure non saturés en fonction de  $Ca_c$ , tandis que les valeurs de  $\lambda$  qui s'écartent de cette courbe maîtresse correspondent à des rayons de courbure saturés. La valeur de  $(1/B)_c = 12 \left(\frac{w}{b}\right)^2 Ca_c$  pour laquelle les résultats expérimentaux de  $\lambda$  pour une géométrie donnée commencent à dévier de la courbe universelle se déduit du nombre capillaire  $Ca_c$ , pour lequel la saturation du rayon de courbure est observée. Notons qu'une saturation du rayon de courbure au même nombre capillaire  $Ca_c$  pour différentes géométries entraîne ainsi une saturation de  $\lambda$  à des valeurs de  $(1/B)_c$  différentes. La valeur du plateau sur lequel  $\lambda$  se stabilise pour une géométrie donnée est déterminée par cette valeur de  $(1/B)_c$  et diffère ainsi d'une géométrie à l'autre.



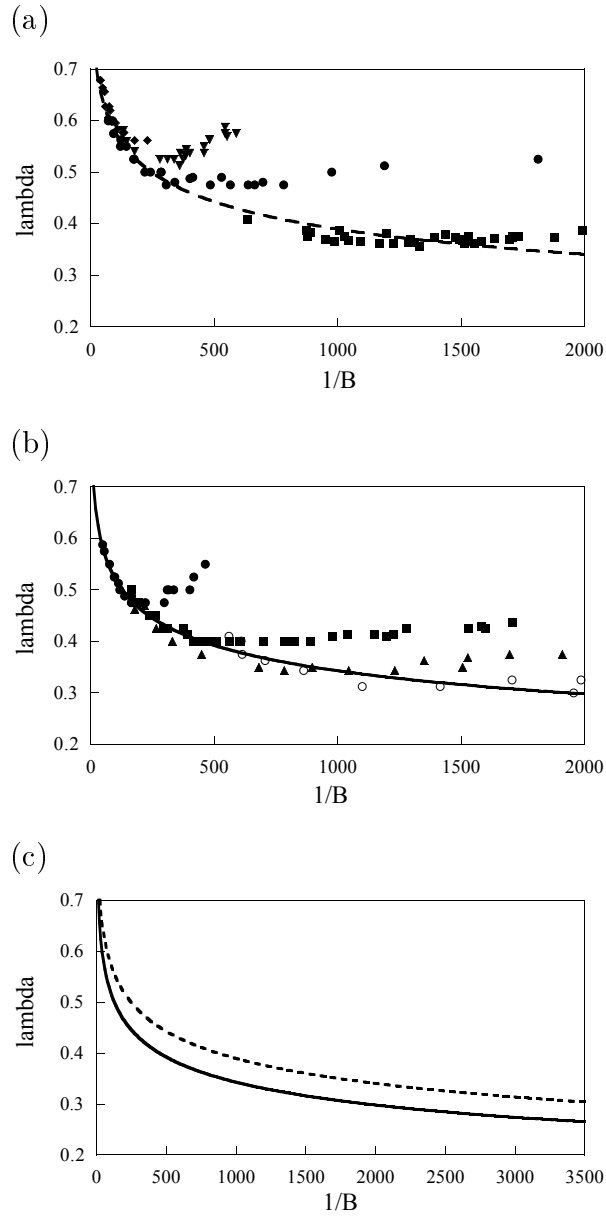


FIG. 9.6: a) La largeur relative en fonction de  $1/B$  pour une solution de Xanthane de 500 ppm pour  $W = 2$  cm et  $b = 0.25$  mm ( $\blacklozenge$ ),  $W = 8$  cm et  $b = 1$  mm ( $\blacktriangledown$ ),  $W = 4$  cm et  $b = 0.25$  mm ( $\bullet$ ) et  $W = 8$  cm et  $b = 0.25$  mm ( $\blacksquare$ ) et la solution de l'équation (9.3) pour  $\alpha = 2.5$  (- -). b) La largeur relative en fonction de  $1/B$  pour une solution de Xanthane de 1000 ppm pour  $W = 4$  cm et  $b = 0.66$  mm ( $\bullet$ ),  $W = 4$  cm et  $b = 0.25$  mm ( $\blacksquare$ ),  $W = 8$  cm et  $b = 0.5$  mm ( $\blacktriangle$ ) et  $W = 8$  cm et  $b = 0.25$  mm ( $\circ$ ) et la solution de l'équation (9.3) pour  $\alpha = 1.8$  (-). c) Solution de l'équation (9.3) pour  $\alpha = 2.5$  (- -) et  $\alpha = 1.8$  (-).

On constate que l'évolution des résultats expérimentaux pour  $\lambda$  avec  $1/B$  se trouvant sur la courbe maîtresse est bien décrite par l'équation (9.3). Le paramètre  $\alpha$  qui a été déduit des résultats expérimentaux dans une géométrie particulière reste valable pour les autres géométries. Sur la figure 9.6 (c) les solutions de l'équation (9.3) sont montrées pour les deux valeurs expérimentales de  $\alpha=2.5$  (500 ppm) et  $\alpha=1.8$  (1000 ppm). Comme ces courbes ne tiennent pas compte de la saturation,  $\lambda$  tend vers zéro pour des  $1/B$  grands. Pour un même  $1/B$ ,  $\lambda$  est d'autant plus petit que la valeur de  $\alpha$  est plus petite.  $\alpha$  est donc une mesure de l'ampleur de l'anisotropie dans le système et ainsi du caractère rhéofluidifiant des solutions. Une telle variation de la valeur de  $\alpha$  avec l'ampleur de l'anisotropie a aussi été observé pour les doigts anormaux [26] où des gravures plus profondes entraînent des doigts plus fins. En connaissant la relation entre le paramètre  $\alpha$  et  $n$  (équation 9.4) pour les fluides rhéofluidifiants il est possible de prédire les valeurs de  $\lambda$  de la courbe universelle en fonction de  $1/B$  pour de tels fluides.

## 9.4 Saturation de $\rho/b$

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que la relation entre le rayon de courbure adimensionné  $\rho/b$  et  $l_0/b = 1/\sqrt{12Ca}$  ( $Ca = \eta U/\sigma$ ) est linéaire seulement pour des vitesses faibles, correspondant à des nombres capillaires  $Ca$  élevés. Pour chaque géométrie, on observe une saturation de  $\rho/b$  sur une valeur constante pour des nombres capillaires supérieures à une certaine valeur  $Ca_c$ .  $Ca_c$  détermine, pour une géométrie donnée, la valeur du plateau observé pour  $\lambda$  en fonction de  $1/B$ , pour  $1/B$  élevé qui a été discuté au paragraphe précédent.

Dans le cas des doigts anormaux dans les fluides newtoniens, Rabaud *et al.* [73] ont montré que cette saturation intervient quand le système ne peut plus être traité en deux dimensions. C'est à dire quand le rayon de courbure  $\rho$  devient du même ordre de grandeur que le rayon de courbure dans la direction de l'épaisseur de la cellule ( $\sim b/2$ ) et donc  $\rho/b \sim 2$ . Dans les fluides rhéofluidifiants  $\rho/b$  sature à des valeurs beaucoup plus élevées qui varient de plus avec le caractère rhéofluidifiant des solutions (Figs. 9.4 (a) et 9.4 (b)). La saturation dans les deux cas ne semble donc pas avoir la même origine.

La saturation de  $\rho/b$  pour les fluides rhéofluidifiants pourrait être liée aux propriétés non-newtoniennes de ces fluides. Comme les propriétés non-newtoniennes dépendent du cisaillement nous vérifions pour l'exemple de la solution de 1000 ppm si la saturation intervient toujours au même cisaillement  $\dot{\gamma}_c$  pour une concentration donnée. Pour cela nous déduisons le cisaillement  $\dot{\gamma}_c$  du nombre capillaire  $Ca_c$  : le nombre capillaire  $Ca = \eta(\dot{\gamma}(U))U/\sigma$  étant une fonction de la vitesse  $U$ , on peut déterminer  $U$  en connaissant  $Ca$

et ensuite calculer le cisaillement  $\dot{\gamma}_c = \frac{V}{b} \frac{2(1+2n)}{1+n}$  (équation (7.6)) qui dépend de l'épaisseur de la cellule  $b$ . On constate effectivement que la saturation intervient à peu près à la même valeur de  $1/\sqrt{12Ca_c}$  (et par la relation  $\rho = \alpha l_0$  (équ. (9.2)) aussi à la même valeur de  $\rho/b$ ) si la largeur  $W$  de la cellule est modifiée, mais que cette valeur change avec l'épaisseur  $b$  de la cellule, lié au cisaillement à travers l'équation (7.6). On obtient pour  $b = 0.25$  mm et  $W = 2, 4$  ou  $8$  cm :  $1/\sqrt{12Ca_c} \sim 7.7$  ( $\rho/b \sim 14$ ) ce qui correspond à un cisaillement de  $\dot{\gamma}_c \sim 60$  s<sup>-1</sup> et pour  $b = 0.25$  mm et  $W = 4$  cm :  $1/\sqrt{12Ca_c} \sim 5$  ( $\rho/b \sim 9$ ) ce qui correspond à un cisaillement de  $\dot{\gamma}_c \sim 90$  s<sup>-1</sup>. La saturation intervient donc pour une concentration en polymères donnée à des cisaillements comparables pour toutes les géométries utilisées. Ceci indique que c'est très probablement une propriété non-newtonienne des fluides qui est à l'origine de la saturation.

Une telle propriété pourrait être la saturation de la viscosité non-newtonienne sur une valeur constante  $\eta_\infty$  à cisaillement élevé (paragraphe 2.3.1). Dans cette région, le fluide perd ainsi son caractère rhéofluidifiant ce qui pourrait être à l'origine de la saturation de  $\rho/b$ . Une comparaison des cisaillements  $\dot{\gamma}_c$  pour des concentrations différentes montre que  $\dot{\gamma}_c$  diminue à mesure que la concentration des solutions augmente : pour  $c = 2000$  ppm on obtient  $\dot{\gamma}_c \sim 20$  s<sup>-1</sup>, pour  $c = 1000$  ppm  $\dot{\gamma}_c \sim 60$  s<sup>-1</sup> et pour  $c = 500$  ppm  $\dot{\gamma}_c \sim 140$  s<sup>-1</sup>.  $\eta_\infty$  est par contre atteint pour des cisaillements de plus en plus élevés quand la concentration et ainsi le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente (paragraphe 5.1.2). La décroissance de  $\dot{\gamma}_c$  avec la concentration des solutions exclut donc  $\eta_\infty$  comme origine de la saturation du rayon de courbure.

Le fait que  $\dot{\gamma}_c$  croît avec la concentration des solutions indique cependant que la contrainte normale pourrait jouer un rôle. L'importance des contraintes normales dans les solutions de polymères augmente en fonction du cisaillement et la concentration des solutions : pour atteindre des valeurs identiques de contrainte normale dans deux solutions de concentrations différentes, il faut atteindre des cisaillements plus élevés pour la solution moins concentrée. Le fait que  $\dot{\gamma}_c$  diminue quand  $c$  augmente pourrait donc indiquer l'effet des contraintes normales sur la saturation. Dans le paragraphe 5.1.4, nous avons cependant montré que, dans les solutions de Xanthane de 500 ppm et de 1000 ppm, il n'y a pas de contrainte normale détectable à des cisaillements de l'ordre de grandeur de  $\dot{\gamma}_c$  ( $\dot{\gamma}_c \sim 100$  s<sup>-1</sup>). Dans le chapitre 11 qui traite l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides qui montrent des effets élastiques, nous montrerons que les contraintes normales se manifestent très probablement dans le film de mouillage qui reste entre les doigts et les plaques de la cellule. Etant donné la faible épaisseur de ce film, le cisaillement  $\dot{\gamma}$  est beaucoup plus élevé que dans la cellule entièrement remplie avec le fluide. Pour de tels cisaillements, la contrainte normale pourrait atteindre des valeurs significatives, même à faible concentration. Ces valeurs significatives ne sont cependant pas atteintes dans la

gamme de cisaillements qui nous est accessible dans nos expériences de rhéologie. Dans le chapitre 11, nous montrerons également que la présence de contraintes normales entraîne la formation de doigts plus larges que  $\lambda = 0.5$  à vitesse élevée. Ceci pourrait de plus expliquer l'augmentation des valeurs de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  observée pour des valeurs de  $1/B$  encore plus élevées.

Notons que la forme des doigts change également au moment de la saturation et ne peut ensuite plus être décrite par la solution de Saffman et Taylor (équation. (1.15)).

## 9.5 Comparaison avec les théories pour les fluides rhéofluidifiants

Comme nous l'avons montré dans le paragraphe 9.3, les résultats de la largeur relative des doigts  $\lambda$  en fonction de leur vitesse obtenus dans les fluides fortement rhéofluidifiants se divisent en deux régimes : un régime à basse vitesse où les valeurs de  $\lambda$  obtenues pour une concentration donnée mais pour différentes géométries de la cellule, suivent une courbe maîtresse si elles sont tracées en fonction de  $1/B$  et un régime à haute vitesse où la largeur relative  $\lambda$  sature sur une valeur qui dépend de la géométrie de la cellule. Nous avons aussi montré que cette courbe maîtresse  $\lambda(1/B)$  tend vers zéro pour  $1/B$  grand. Nous allons maintenant comparer les résultats expérimentaux qui se trouvent sur cette courbe maîtresse aux prédictions théoriques de Ben Amar et Corvera Poiré [4, 5, 23] pour l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides rhéofluidifiants, dont nous savons qu'elles prédisent un tel comportement. Nous utilisons ici uniquement les prédictions du modèle dans lequel les équations du mouvement sont changées [5, 23] par rapport à l'analyse classique afin de tenir compte du caractère rhéofluidifiant des fluides. Nous avons montré au chapitre 8 que ce modèle est plus réaliste que le modèle  $\eta$  [4] et est ainsi mieux adapté pour décrire l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides rhéofluidifiants. On voit sur la figure 9.7 les résultats expérimentaux pour une solution de Xanthane de 500 ppm ( $n = 0.61$ ) pour différentes géométries du canal (cf figure 9.6 (a)) et la prédiction théorique de [5, 23] ( $n = 0.6$ ). Notons, que seules les valeurs de  $\lambda$  qui se trouvent sur la courbe maîtresse sont montrées. On observe un bon accord. Pour des  $1/B$  très faibles seulement les données expérimentales dévient légèrement de la courbe théorique. Nous ne disposons malheureusement pas de données numériques pour  $n = 0.5$  et ne pouvons donc pas comparer les résultats expérimentaux pour la concentration de 1000 ppm en Xanthane aux prédictions théoriques.

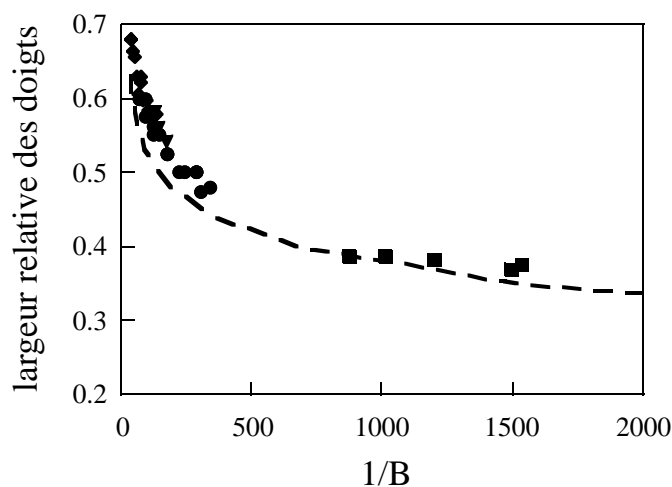


FIG. 9.7: La largeur relative des doigts  $\lambda$  en fonction de  $1/B$ . Les symboles représentent les résultats expérimentaux pour une solution de Xanthane de 500 ppm ( $n = 0.61$ ) obtenues dans différentes géométries (cf Figure 9.6). Le trait représente la prédiction théorique de Ben Amar et Corvera Poiré [5, 23] pour  $n = 0.6$ .

## 9.6 Limite de validité

Le mécanisme de sélection décrit dans ce chapitre s'applique seulement dans une certaine gamme de concentrations. Pour les fluides faiblement rhéofluidifiants, nous avons montré dans le chapitre précédent que les résultats de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  tendent vers les résultats classiques. En effet, les résultats obtenus pour deux largeurs différentes de la cellule suivent une seule courbe qui coïncide de plus avec la courbe universelle des fluides newtoniens [64] s'ils sont tracés en fonction de  $1/B$  (Fig. 9.8). Dans cette limite, on retrouve donc les résultats classiques.

Dans la limite des concentrations très élevées, le domaine de validité est limité par un autre effet. À partir d'une certaine concentration ( $c > 2000$  ppm), les valeurs de  $\lambda$  obtenues dans les expériences pour différentes géométries ne suivent plus une courbe universelle s'il sont représentés en fonction de  $1/B = 12Ca \left(\frac{w}{b}\right)^2$ . Dans cette limite,  $1/B$  n'est plus paramètre de contrôle du système. Il est cependant possible d'obtenir une courbe universelle si les résultats de  $\lambda$  sont tracés en fonction de  $(1/B)^* = 12Ca \left(\frac{w}{b}\right)$  (Fig. 9.9). Une explication possible proposée par Ben Amar [6] de ce nouveau paramètre de contrôle est que des effets tridimensionnels commencent à devenir importants pour les fluides très fortement rhéofluidifiants. Un tel effet est par exemple produit par l'accroissement du film de mouillage qui se trouve entre les plaques et le doigt (paragraphe 1.6). Pour l'analyse

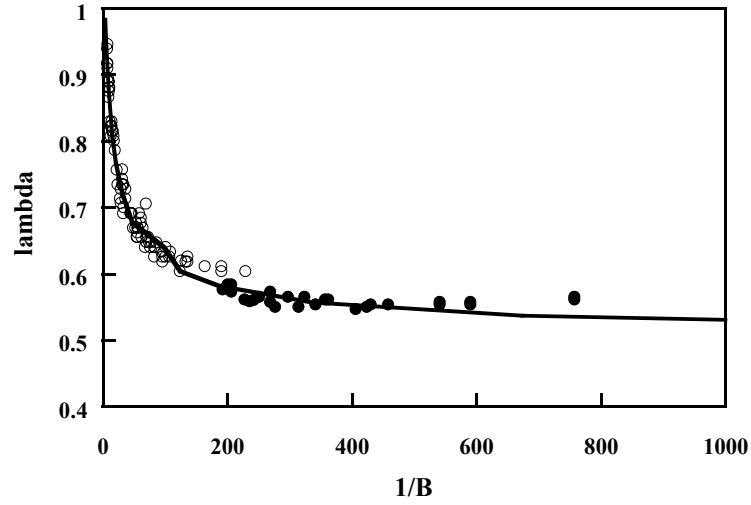


FIG. 9.8: La largeur relative des doigts pour une solution de Xanthane de 250 ppm en fonction de  $1/B$  pour  $b = 0.25$  mm et  $W = 2$  cm ( $\circ$ ) et  $4$  cm ( $\bullet$ ).

bidimensionnelle, le rayon de courbure selon l'épaisseur de la cellule est considéré comme constant et proportionnel à  $\frac{b}{2}$ . On moyenne ainsi sur la troisième dimension, et dans la suite de l'analyse le saut de pression à l'interface dû à la tension de surface est seulement modifié par les changements du rayon de courbure dans le plan de la cellule. En prenant  $W$  comme longueur typique du système le saut de pression à l'interface du doigt est de l'ordre de

$$\delta p_{\text{cap 2d}} \sim \frac{\sigma}{W} \quad (9.5)$$

Le terme de pression visqueuse, s'obtient à partir de la loi de Darcy où on remplace  $\nabla p$  par  $\frac{p}{W}$  :

$$p_{\text{visq}} \sim 12\eta U \left( \frac{W}{b^2} \right) \quad (9.6)$$

Une comparaison des deux grandeurs de pression mène au paramètre de contrôle  $1/B$  bien connu :

$$1/B = \frac{p_{\text{visq}}}{p_{\text{cap 2d}}} = 12Ca \left( \frac{W}{b} \right)^2 \quad (9.7)$$

Si maintenant le rayon de courbure dans la direction de l'épaisseur de la cellule change au cours de l'expérience il faut de nouveau tenir compte de la troisième dimension. Comme le rayon de courbure dans la direction de l'épaisseur de la cellule est beaucoup plus petit que celui dans le plan de la cellule, le saut de pression à l'interface dû à ce dernier peut être négligé et on trouve :  $p_{\text{cap 3d}} \sim \frac{\sigma}{b}$ . Ceci mène à un paramètre de contrôle de la forme suivante :

$$\frac{p_{\text{visq}}}{p_{\text{cap 3d}}} = 12Ca \left( \frac{W}{b} \right) \quad (9.8)$$

Ce paramètre est identique à celui trouvé expérimentalement menées dans les expériences dans les fluides très fortement rhéofluidifiants (Fig. 9.9). Des effets tridimensionnels pour-

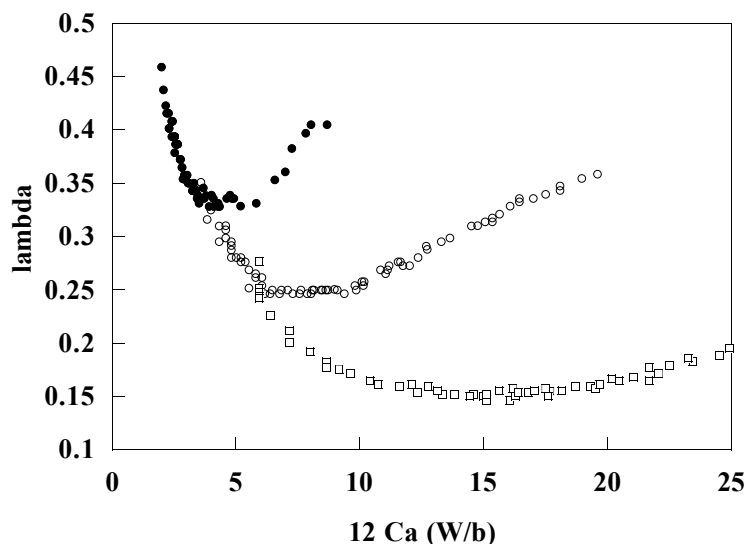


FIG. 9.9: La largeur relative des doigts pour une solution de Xanthane de 3000 ppm en fonction de  $1(1/B)^* = 2Ca \left(\frac{W}{b}\right)$  pour  $b = 0.25$  mm et  $W = 2$  cm ( $\bullet$ ), 4cm ( $\circ$ ) et 8cm ( $\square$ ).

raient donc être à l'origine de ce nouveau paramètre de contrôle. Ces effets tridimensionnels pourraient être induits de nouveau par des effets de contrainte normale qui deviennent importants à des concentrations de Xanthane élevées (paragraphe 5.1.4). La même forme du paramètre de contrôle  $(1/B)^* = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)$  est aussi observée lors des expériences dans un gel dans le régime où le gel se comporte comme un fluide très rhéofluidifiant et sera discutée au chapitre 10.

## 9.7 Conclusion

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que, pour des fluides faiblement rhéofluidifiants, la largeur relative des doigts  $\lambda$  tracée en fonction du paramètre  $1/B$  dans lequel  $\eta$  est remplacée par  $\eta(\dot{\gamma})$  coïncide avec la courbe maîtresse des fluides newtoniens [64]. Les écarts par rapport à cette courbe, observés pour des fluides plus fortement rhéofluidifiants vers des valeurs plus petites de  $\lambda$ , n'ont cependant pas pu être expliqués dans le cadre du chapitre précédent. On observe notamment un désaccord entre les prédictions des théories existantes [4, 5, 23] pour l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides rhéofluidifiants où la largeur relative tend vers zéro pour des  $1/B$  larges et les résultats expérimentaux où celle-ci se stabilise sur un plateau à  $1/B$  élevé. Nous avons consacré ce chapitre à l'étude

des fluides fortement rhéofluidifiants. Nous avons montré, pour une concentration particulière en Xanthane, que les valeurs de  $\lambda$  obtenues pour différentes largeurs de la cellule de Hele-Shaw ne tendent pas vers un plateau unique à vitesse élevée comme on l’observe pour les fluides newtoniens, où  $\lambda$  tend à vitesse élevée pour toutes les géométries vers  $\lambda = 0.5$ . La valeur du plateau observé pour les fluides fortement rhéofluidifiants dépend par contre de la largeur de la cellule ce qui indique que ce n’est pas la largeur relative qui est sélectionnée à vitesse élevée.

Ceci rappelle les observations faites par Rabaud *et al.* [73] dans les fluides newtoniens où ils ont perturbé les doigts par une rayure sur les plaques selon l’axe du canal. Cette perturbation crée une anisotropie comparable à celle formée dans les fluides rhéofluidifiants lors d’une expérience de digitation visqueuse (cf paragraphe 8.2). Rabaud *et al.* [73] montrent que, pour une vitesse donnée leur “doigts anormaux” ont des largeurs différentes mais des rayons de courbure  $\rho$  à la pointe des doigts identiques dans des cellules de largeurs différentes. Ceci a motivé une étude de ce rayon de courbure dans les solutions de Xanthane.

Lors de cette étude, nous avons montré qu’on peut distinguer entre deux régimes différents si le rayon de courbure adimensionné  $\rho/b$  est tracé en fonction du nombre capillaire  $Ca$ . Dans le régime à basse vitesse,  $\rho/b$  est une fonction linéaire de  $1/\sqrt{12Ca}$  avec un coefficient de proportionnalité  $\alpha$  tandis que  $\rho/b$  sature dans le régime à vitesse élevée. On peut montrer que la valeur de  $\alpha$  qui relie  $\rho/b$  à  $1/\sqrt{12Ca}$  dans le régime à basse vitesse est indépendante de la géométrie de la cellule, mais dépend de la concentration de la solution et est ainsi une mesure de l’ampleur de l’anisotropie dans le système. Nous avons montré que  $\alpha$  est un fonction linéaire de l’exposant  $n$  du modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  pour la viscosité rhéofluidifiante. Nous avons aussi montré que seules les valeurs de  $\lambda$  provenant de ce régime à basse vitesse suivent une courbe maîtresse pour différentes géométries si elles sont tracées en fonction de  $1/B$ . Rabaud *et al.* [73] donnent une expression analytique de la forme de cette courbe  $\lambda(1/B)$  en fonction de  $\alpha$ . Cette courbe universelle tend vers 0 pour des  $1/B$  larges. Comme nous avons déterminé la relation entre  $\alpha$  et  $n$ , il est maintenant possible de prédire dans ce régime la largeur des doigts en fonction de  $1/B$  à partir des mesures rhéologiques.

Il est de plus maintenant possible de montrer que les valeurs de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  qui se trouvent sur cette courbe maîtresse sont en excellent accord avec les prédictions théoriques de Ben Amar et Corvera Poiré [5, 23] traitant l’instabilité de Saffman Taylor pour les fluides rhéofluidifiants.

Dans le régime à haute vitesse, on observe une saturation de  $\rho/b$ . Nous avons montré que cette saturation intervient pour un nombre capillaire critique  $Ca_c$  qui est, pour une concentration donnée, fonction de l’épaisseur de la cellule mais ne dépend pas de sa



largeur. Ceci indique que  $Ca_c$  est déterminé par le cisaillement dans la cellule. De plus,  $Ca_c$  varie avec la concentration des solutions. Une explication possible de la saturation de  $\rho/b$  pourrait donc être la manifestation de contraintes normales  $N_1(\dot{\gamma})$  à vitesse élevée qui sont une fonction du cisaillement et de la concentration.

La saturation de  $\rho/b$  correspond à la saturation de  $\lambda$  sur un plateau à vitesse élevée, observée dans nos expériences. Les résultats pour  $\lambda$  dévient de la courbe maîtresse  $\lambda(1/B)$  pour une valeur  $(1/B) = 12 \left(\frac{W}{b}\right)^2 Ca_c$  et saturent sur une valeur constante.

En conclusion, nous avons montré que les valeurs de la largeur relative des doigts  $\lambda$  en fonction de leur vitesse obtenues dans les fluides fortement rhéofluidifiants se divisent en deux régimes : un régime basse vitesse où les résultats pour  $\lambda$  obtenus pour une concentration donnée mais pour différentes géométries de la cellule suivent une courbe maîtresse s'ils sont tracés en fonction de  $1/B$  et un régime haute vitesse où la largeur relative  $\lambda$  sature à une valeur dépendant de la géométrie de la cellule. La courbe maîtresse obtenue est en bon accord avec les théories traitant l'instabilité dans les fluides rhéofluidifiants [5, 23].

# Chapitre 10

## Le fluide à seuil

Dans les chapitres précédents (8 et 9), nous avons étudié l'instabilité de Saffman-Taylor dans des fluides dont la viscosité est rhéofluidifiante. Dans de tels fluides, on observe la formation de doigts stables d'une largeur relative  $\lambda$  qui peut atteindre des valeurs nettement plus petites que la limite classique de  $\lambda = 0.5$  pour les fluides newtoniens à vitesse élevée. Cependant à l'exception de leur largeur, ces doigts fins ressemblent à ceux observés dans les fluides newtoniens.

Lors d'expériences avec d'autres fluides non-newtoniens comme de la mousse, des argiles ou des solutions de polymères associatifs on observe par contre souvent des structures fractales de doigts branchés ou des doigts qui ressemblent à des fractures [54, 89, 97, 61]. De telles observations ne peuvent donc pas uniquement être expliquées par une viscosité rhéofluidifiante. Les fluides auxquels nous avons fait référence ci-dessus possèdent tous, en dehors d'autres propriétés non-newtoniennes, un seuil d'écoulement, qui pourrait être à l'origine des structures observées. Ceci a motivé une étude de l'instabilité de Saffman-Taylor dans un fluide à seuil que nous présenterons dans ce chapitre. Les résultats de cette étude se trouvent aussi dans Lindner *et al.* [57].

Un fluide à seuil est caractérisé par une contrainte critique  $\tau_c$  qu'il faut dépasser pour engendrer un mouvement dans ce fluide. En dessous de cette contrainte critique le fluide à seuil se comporte comme un solide élastique, au dessus comme un fluide visqueux dont la viscosité est dans beaucoup de cas rhéofluidifiante. Un tel comportement est décrit par le modèle de Herschel-Bulkley pour la contrainte :  $\tau = \tau_c + k_1 \dot{\gamma}^n$  (équation (2.17)). Nous réalisons ici des expériences dans un gel. Des mesures rhéologiques de la contrainte en fonction du cisaillement (cf paragraphe 5.3.2) ont montré que ce gel est un fluide à seuil dont le comportement est bien décrit par le modèle de Herschel-Bulkely.

## 10.1 La loi de Darcy pour un fluide à seuil

Avant d'étudier la digitation visqueuse dans un fluide à seuil, nous allons discuter l'adaptation de la loi de Darcy à un tel fluide. La loi de Darcy pour un fluide newtonien introduite au paragraphe 1.2 (équation (1.1)) :

$$\mathbf{V} = -\frac{b^2}{12\eta}\nabla p \quad (10.1)$$

relie le gradient de pression appliqué entre l'entrée et la sortie de la cellule à la vitesse moyenne du fluide loin devant le doigt. Comme nous l'avons montré au paragraphe 7.2, cette vitesse  $V$  est reliée à la vitesse du doigt par  $V = \lambda U$ . La loi de Darcy est l'une des équations de base permettant de décrire l'instabilité de Saffman-Taylor et il est donc important d'étudier sa validité aussi pour un fluide à seuil.

Nous mesurons donc la vitesse  $V$  en fonction du gradient de pression appliqué  $\nabla p$  lors des expériences de digitation visqueuse dans le gel. Pour cela, nous utilisons la petite cellule de Hele-Shaw d'une largeur de  $W = 4$  cm, d'épaisseur  $b = 0.5$  mm et d'une longueur de 27 cm. La détermination des valeurs expérimentales  $V(\nabla p)$  a été décrite pour les expériences dans les solutions de Xanthane dans le paragraphe 7.1. Notons que pour le gel, le gradient de pression est déterminé avec moins de précision qu'auparavant. Dû aux pressions élevées nécessaires lors des expériences dans le gel, nous mesurons celle-ci à l'aide d'un manomètre d'une précision de 0.05 bar.

On voit les résultats  $V(\nabla p)$  pour le gel sur la figure 10.1. On constate que la relation entre la vitesse et le gradient de pression n'est pas linéaire comme prédit par la loi de Darcy pour un fluide newtonien (équ. (10.1)). La forme de  $V(\nabla p)$  observée dans le gel ressemble à première vue beaucoup à celle observée dans un fluide rhéofluidifiant (cf paragraphe 7.3).

Comme un fluide à seuil est caractérisé par une contrainte critique  $\tau_c$  qui doit être dépassée pour mettre le fluide en mouvement, on s'attend à ce que l'écoulement en cellule de Hele-Shaw ne se manifeste qu'à partir d'une valeur critique du gradient de pression  $\nabla p$ . Pour obtenir une approximation de cette valeur, nous remplaçons dans la loi de Darcy newtonienne (équ. 10.1), la viscosité  $\eta$  par la viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  qui dépend du cisaillement. Ceci mène à une loi de Darcy effective  $\mathbf{V} = -\frac{b^2}{12\eta(\dot{\gamma})}\nabla p$  (équation (7.3)). Une approche similaire a aussi été discutée pour le fluide rhéofluidifiant (paragraphe 7.3). La viscosité pour un fluide à seuil s'écrit d'après le modèle de Herschel-Bulkley (équation (2.17)) pour la contrainte  $\tau = \tau_c + k_1\dot{\gamma}^n$  de la façon suivante :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = \frac{\tau_c}{\dot{\gamma}} + k_1\dot{\gamma}^{n-1} \quad (10.2)$$

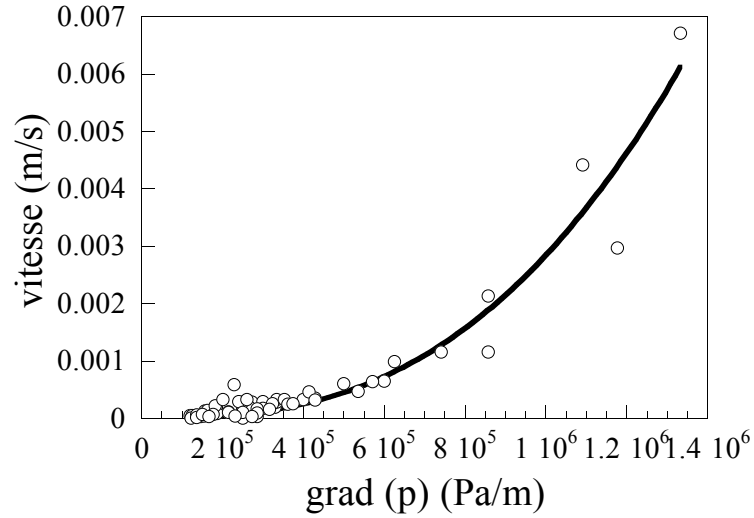


FIG. 10.1: Vitesse  $V$  loin devant le doigt en fonction du gradient de pression  $\nabla p$  appliqué dans le gel dans une cellule de Hele-Shaw de  $W = 4$  cm et de  $b = 0.5$  mm. Le trait représente un fit en loi de puissance.

Pour de faibles vitesses, le terme visqueux  $k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  peut être négligé devant  $\frac{\tau_c}{\dot{\gamma}}$  et la viscosité s'écrit  $\eta(\dot{\gamma}) \approx \tau_c / \dot{\gamma}$ . En supposant de plus  $\dot{\gamma} = 3V/b$ , la valeur critique du gradient de pression  $(\nabla p)_c$  découle de la loi de Darcy effective :

$$(\nabla p)_c \approx \frac{4\tau_c}{b} \quad (10.3)$$

Pour le gel,  $\tau_c = 16$  Pa (cf tableau 5.2) et on obtient un gradient de pression critique de  $(\nabla p)_c \approx 1.3 * 10^5$  Pa/m. On ne voit effectivement pas de points en dessous de  $\nabla p \approx 1 * 10^5$  Pa/m sur la figure 10.1.

Pour des vitesses plus élevées, le terme  $k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  domine sur  $\frac{\tau_c}{\dot{\gamma}}$  et le fluide se comporte comme un fluide rhéofluidifiant. Nous allons donc tester si la loi de Darcy non-newtonienne (équation 7.5) obtenue en moyennant sur un profil de vitesse non-newtonien pour un fluide rhéofluidifiant, obtenu au paragraphe 7.3 :

$$V = \frac{b}{2(2 + 1/n)} \left( \frac{b}{2k_1} \right)^{1/n} |\nabla p|^{1/n} \quad (10.4)$$

s'applique aussi aux fluides à seuil. Au paragraphe 7.3, nous avons montré que cette loi de Darcy non-newtonienne est mieux adaptée aux fluides fortement rhéofluidifiants que la loi de Darcy effective évoquée ci-dessus. Le gel étant à vitesse élevée, un fluide fortement rhéofluidifiant, nous allons ici seulement étudier la validité de la loi de Darcy non-newtonienne (équation 10.4). Nous calculons la contrainte  $\tau(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^n$  à partir des

résultats expérimentaux  $V(\nabla p)$  (Fig. 10.2). Pour cela, nous utilisons la valeur  $n = 0.38$  déterminée par des mesures rhéologiques  $\tau(\dot{\gamma})$  (cf tableau 5.2).  $k_1$  est calculé à l'aide de l'équation (10.4) pour chaque point  $V(\nabla p)$ . Le cisaillement moyenné dans la cellule est maintenant donné par  $\dot{\gamma} = \frac{V}{b} \frac{2(1+2n)}{1+n}$  (équ. (7.6)). Ceci permet d'obtenir des résultats de la forme  $\tau(\dot{\gamma})$  qui peuvent être comparés aux mesures rhéologiques. La figure 10.2 montre

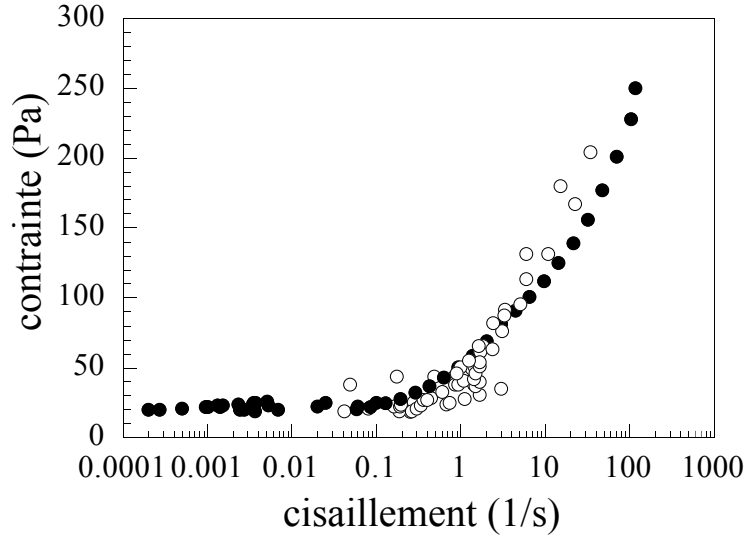


FIG. 10.2: La contrainte en fonction du cisaillement pour le gel provenant des mesures rhéologiques ( $\bullet$ ) et déduites des expériences de digitation visqueuses ( $\circ$ ). Pour cela, une loi de Darcy non-newtonienne (équation (10.4)) obtenue pour des fluides uniquement rhéofluidifiants est utilisée.

que les mesures rhéologiques et les valeurs déduites de la digitation visqueuse sont à la précision de nos mesures, en bon accord. La loi de Darcy non-newtonienne (équ. (10.4)) pour un fluide rhéofluidifiant décrit donc bien le comportement des fluides à seuil dans la gamme de vitesses accessible dans nos expériences.

Une autre façon de vérifier si la loi de Darcy non-newtonienne est valable, est de faire un fit des données  $V(\nabla p)$  de la figure 10.1 avec cette loi. Du fit découle  $n = 0.37$  et  $k_1 = 59 \pm 23 \text{ Pa s}^n$ . Notons que l'erreur sur le fit est assez large à cause du fait qu'il y a peu de points à vitesse élevée. Le fit des mesures directes de la contrainte  $\tau(\dot{\gamma})$  avec le modèle de Herschel-Bulkley donne  $n = 0.38$  et  $k_1 = 38 \text{ Pa s}^n$  (cf tableau 5.2). Les paramètres obtenus par les deux méthodes, sont à la précision de nos mesures, en bon accord.

On constate que nos résultats  $V(\nabla p)$  obtenus dans un fluide à seuil peuvent, à la précision de nos expériences, être entièrement décrits par une loi de Darcy non-newtonienne obtenue pour un fluide uniquement rhéofluidifiant. A très faible vitesse, où la contrainte

seuil du fluide devient importante, on s'attend à des écarts des résultats expérimentaux par rapport à cette loi de Darcy non-newtonienne. Ces déviations ne sont cependant pas détectables dans nos expériences car nous ne disposons pas d'une précision suffisamment élevée lors de la détermination de  $V(\nabla p)$  à faible vitesse. Il est de plus difficile de déterminer le gradient de pression critique  $(\nabla p)_c$  en dessous duquel il n'y a pas de formation de doigts. Ceci est également dû au fait que la vitesse minimale accessible est limitée par la précision des mesures. Nos mesures de  $V(\nabla p)$  ne permettent donc pas de distinguer entre un fluide à seuil et un fluide purement rhéofluidifiant.

Une loi de Darcy pour un fluide à seuil a été obtenue par Coussot [27]. Il utilise également le modèle de Herschel-Bulkley pour décrire le comportement du fluide. Pour obtenir la loi de Darcy, Coussot calcule le profil de vitesse de l'écoulement d'un fluide à seuil dans une cellule de Hele-Shaw et moyenne ensuite ce profil sur l'épaisseur de la cellule :

$$|\nabla p| = \frac{2\tau_c}{b} \left[ 1 + c \left( \frac{k_1 |V|^n}{\tau_c (b/2)} \right)^d \right] \quad (10.5)$$

où  $d$  et  $c$  sont des paramètres ajustables qui dépendent du fluide utilisé. Notons que la loi de Darcy non-newtonienne pour un fluide rhéofluidifiant (équ. (10.4)) a été obtenue de la même façon, en utilisant le modèle en loi de puissance  $\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  (équation 2.14). Dans la limite  $V \rightarrow 0$ , on retrouve à un facteur 2 près, le résultat approximatif du gradient de pression critique  $(\nabla p)_c \approx \frac{4\tau_c}{b}$  de l'équation (10.3) donnée ci-dessus. A haute vitesse, où  $\tau_c$  peut être négligé, on trouve en supposant  $d = 1$  et en résolvant l'équation (10.5) pour  $V$  :

$$V = \frac{b}{2} \left( \frac{1}{c} \right)^{1/n} \left( \frac{b}{2k_1} \right)^{1/n} |\nabla p|^{1/n} \quad (10.6)$$

En posant  $\left(\frac{1}{c}\right)^{1/n} = \frac{1}{2+1/n}$ , ce qui mène à  $c = 1.8$ , on retrouve le résultat de la loi de Darcy non-newtonienne (équ. (10.4)) pour un fluide rhéofluidifiant. Pour une argile avec  $n = 0.33$ , Coussot [29] trouve les valeurs  $c = 1.93$  et  $d = 0.9$  ce qui est du même ordre de grandeur que nos paramètres  $c = 1.8$  et  $d = 1$ . La loi de Darcy obtenue par Coussot (équation 10.6), dans la limite  $V \rightarrow 0$  et  $V \rightarrow \infty$ , aboutit aux résultats obtenus précédemment (équations (10.3) et (10.4)).

Kawaguchi *et al.* [48] ont décrit la dépendance  $V(\nabla p)$  des données similaires à celles trouvées dans le gel (cf figure 10.1) comme une droite qui ne passe pas par zéro. Ils expliquent ceci par l'existence d'un gradient de pression critique dû à un seuil d'écoulement. Dans le chapitre 7, nous avons déjà montré qu'une telle forme de  $V(\nabla p)$  peut être entièrement décrite par une viscosité qui dépend du cisaillement. Dans ce paragraphe, nous avons de plus montré qu'un fluide à seuil disposant d'un seuil de l'ordre de grandeur de celui du gel, ne peut pas être distingué d'un fluide rhéofluidifiant à partir des données

de la forme  $V(\nabla p)$ . Même si les solutions utilisées par Kawaguchi *et al.* [48] pouvaient être classifiées comme des fluides à seuil, il est peu probable que ces solutions possèdent un seuil d'écoulement plus élevé que celui du gel. Il ne semble donc pas justifié d'expliquer la forme de  $V(\nabla p)$  observée par l'existence d'un seuil d'écoulement comme le font Kawaguchi *et al.* [48].

## 10.2 Expériences de digitation visqueuse dans un fluide à seuil : premières observations

Les expériences de digitation visqueuse sont faites dans une petite cellule de Hele-Shaw rectangulaire d'une longueur de 25 cm. Nous entreprenons des expériences pour deux largeurs de canal différentes :  $W = 2$  cm et  $W = 4$  cm et nous faisons varier l'épaisseur du canal de  $b = 0.125$  mm à  $b = 1$  mm. Pour remplir le canal, le gel est répandu sur une plaque et puis écrasé avec l'autre. Le gel dans le canal ainsi rempli est ensuite poussé avec de l'air comprimé, ce qui mène à la formation de doigts visqueux.

À basse vitesse, on observe des structures très ramifiées (Fig. 10.3) qui consistent en plusieurs doigts se séparant répétitivement en deux. On observe régulièrement plusieurs doigts qui se propagent en parallèle dans la cellule. Eventuellement, un doigt écrante les autres qui arrêtent alors de se propager. Le doigt qui continue à bouger se déstabilise de nouveau, se sépare en deux, et le processus recommence.

Dans les fluides newtoniens, des structures ramifiées peuvent aussi être observées. Mais pour ces fluides, les ramifications se produisent toujours comme une instabilité secondaire à haute vitesse (cf paragraphe 1.5). Pour le gel par contre, elles sont observées à très faible vitesse. De plus, et contrairement au cas newtonien, la largeur des doigts ne semble pas dépendre de la vitesse de propagation, ni de la largeur du canal. Cependant, la largeur croît avec l'épaisseur de la cellule comme on le voit sur la figure 10.3 (a). Pour les fluides newtoniens, la largeur des doigts à faible vitesse croît également avec l'épaisseur de la cellule  $b$ . Ceci est dû au fait que  $\lambda$  est une fonction fortement décroissante de  $1/B = 12Ca(W/b)^2$  pour  $1/B$  faible (correspondant à des vitesses faibles) (figure 1.5) : une augmentation de  $b$  entraîne une diminution de  $1/B$  et ainsi une diminution de  $\lambda$ . La dépendance exacte de la largeur des doigts en fonction de l'épaisseur de la cellule pour un fluide à seuil est déterminée dans le paragraphe 10.3 et se révèle cependant différente du cas newtonien.

Pour des vitesses élevées, on observe un régime très différent. Un seul doigt stable se propage au milieu de la cellule. Comme dans le cas newtonien, sa largeur décroît avec la vitesse. De plus, sa forme ressemble beaucoup à la forme d'un doigt visqueux classique.

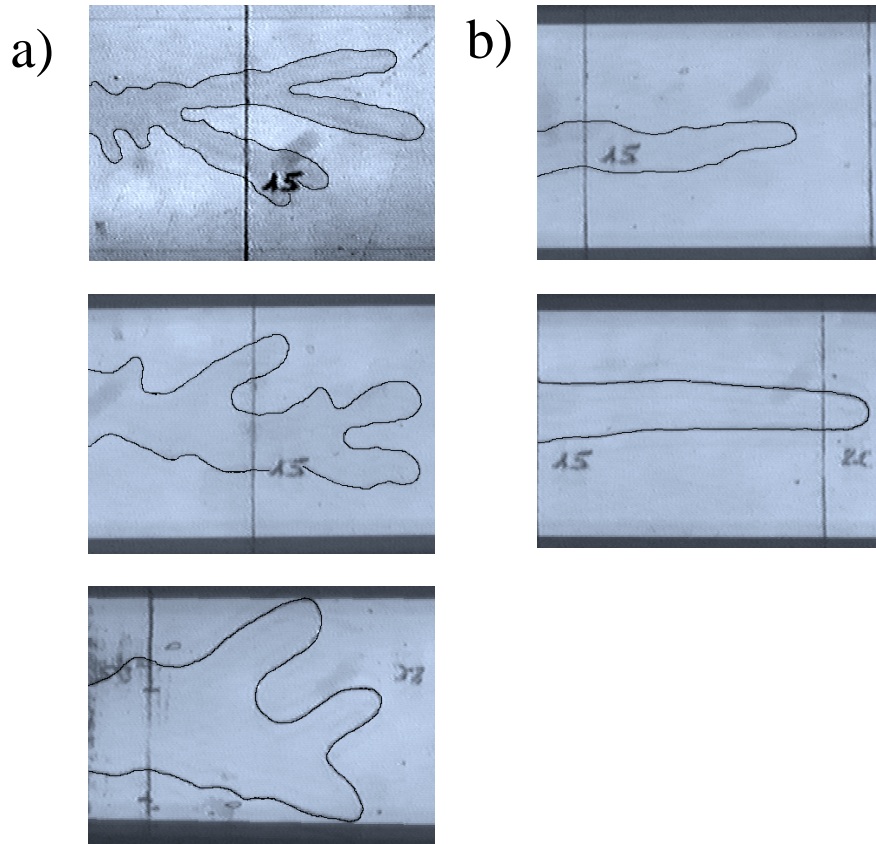


FIG. 10.3: a) Photographies des doigts pour des basses vitesses ( $U < 0.01$  cm/s) pour  $b = 0.125$ ,  $0.25$  et  $0.75$  mm (haut vers le bas). On observe des structures très ramifiées de doigts, dont la largeur augmente avec l'épaisseur de la cellule. b) Photographies des doigts pour des vitesses élevées ( $U > 0.1$  cm/s) pour  $b = 0.25$  mm et  $0.75$  mm (haut vers le bas). On observe un seul doigt au milieu de la cellule.

Deux photographies de doigts à vitesse élevée sont montrées sur la figure 10.3 (b).

Pour caractériser la transition entre les deux régimes quantitativement, nous avons mesuré la largeur des doigts  $w$  en fonction de leur vitesse  $U$  pour une géométrie particulière. Les résultats de plusieurs expériences ont été moyennés pour obtenir les valeurs présentées sur la figure 10.4. On constate qu'à basse vitesse ( $U < 0.03$  cm/s) où on observe des structures ramifiées de doigts, la largeur de ces doigts ne dépend en effet pas de leur vitesse. A vitesse élevée ( $U > 0.1$  cm/s) où on observe un seul doigt au milieu de la cellule, la largeur des doigts décroît avec la vitesse. On peut donc identifier deux régimes différents qui sont séparés par une région bruitée. On appellera le régime à basse vitesse le régime de seuil et le régime à haute vitesse le régime visqueux. Les deux régimes seront



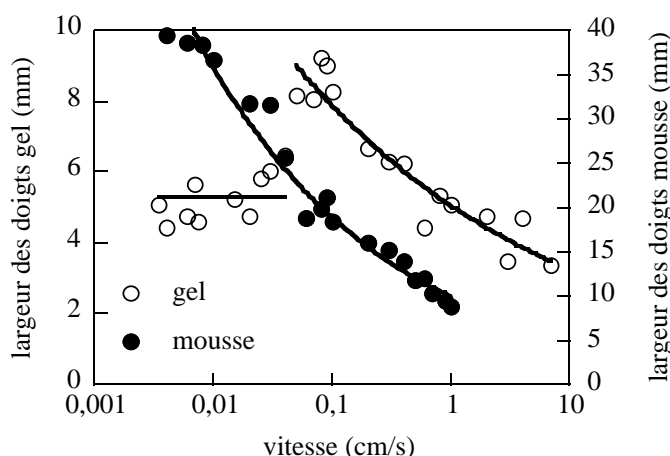


FIG. 10.4: Largeur des doigts  $w$  en fonction de la vitesse  $U$  pour le gel ( $\circ$ ) et la mousse ( $\bullet$ ) pour une cellule de largeur  $W=4\text{cm}$  et d'épaisseur  $b=0.5\text{mm}$ . Pour le gel on peut distinguer deux régimes : un régime basse vitesse où la largeur des doigts ne varie pas avec la vitesse (régime de seuil) et un régime vitesse élevée où la largeur des doigts décroît avec la vitesse (régime visqueux). Pour la mousse, on observe uniquement le régime visqueux.

étudiés séparément dans la suite.

### 10.3 Le régime de seuil

Dans le régime de seuil, qui peut être identifié par une largeur des doigts qui ne dépend pas de leur vitesse, on observe des structures très ramifiées. Ce régime se caractérise par le fait que les contraintes dans le système sont de l'ordre de grandeur de la contrainte seuil  $\tau_c$ . Bien que cette approximation soit probablement très grossière pour un fluide à seuil, nous écrivons le cisaillement sous la forme  $\dot{\gamma} \sim U/b$  dans le but d'obtenir un ordre de grandeur de ce dernier. De la figure 10.4 découle comme valeurs typiques de  $U$  dans le régime de seuil,  $U = 0.01\text{cm}$ . De plus, l'épaisseur de la cellule est de  $b = 0.5\text{mm}$  ce qui mène à  $\dot{\gamma} \sim 0.02\text{s}^{-1}$ . Sur la figure 5.12, on voit que, pour un tel cisaillement, la contrainte  $\tau$  n'est que très faiblement plus grande que  $\tau_c$  : les contraintes visqueuses  $k_1\dot{\gamma}^n$  sont donc faibles :  $\frac{k_1\dot{\gamma}^n}{\tau_c} < 1$ . C'est donc la contrainte seuil  $\tau_c$  qui domine sur les contraintes visqueuses dans ce régime.

Lors de la formation des structures ramifiées de doigts dans ce régime, le seuil d'écoulement n'est probablement pas atteint dans la totalité de la cellule. L'observation de bulles d'air figées dans le gel soutient cette hypothèse. L'existence de zones non-cisaillées dans la cellule peut expliquer que deux doigts ne se "voient" pas nécessairement et peuvent

donc se propager en parallèle dans la cellule. De même, les doigts ne sentent pas les bords du canal et la largeur des doigts est par conséquent indépendante de la largeur du canal.

Dans la suite, nous présenterons une analyse théorique de l'instabilité dans un fluide à seuil et comparerons nos résultats expérimentaux dans le régime de seuil aux prédictions théoriques.

### 10.3.1 Prédictions théoriques

Une analyse théorique d'une instabilité similaire à celle de Saffman-Taylor dans un fluide à seuil a été menée par Shull *et al.* [81] et Fields *et al.* [33]. Ils considèrent un fluide à seuil confiné entre deux plaques. Quand les deux plaques sont éloignées l'une de l'autre, on observe la formation de doigts d'air dans le fluide à seuil. Une analyse linéaire du problème de l'instabilité de Saffman Taylor pour les fluides à seuil a été effectuée par Coussot [27]. Pour son analyse, il utilise la loi de Darcy pour un fluide à seuil (équ. (10.5)) dont nous avons montré la validité au paragraphe 10.1.

Avant de discuter les résultats de ces analyses pour le fluide à seuil, nous allons d'abord rappeler les résultats de l'analyse de stabilité linéaire pour un fluide newtonien (cf. paragraphe 1.3). La largeur caractéristique  $l_c$  de l'instabilité s'écrit pour un fluide newtonien [20] :

$$l_c^2 \approx b^2 \frac{\sigma}{\eta U} \quad (10.7)$$

Avec l'approximation  $\dot{\gamma} \approx U/b$  pour le cisaillement, la contrainte visqueuse  $\tau_{\text{visc}}$  pour un fluide newtonien s'écrit :  $\tau_{\text{visc}} = \eta \dot{\gamma}$ . En utilisant cette relation, on peut exprimer la longueur typique  $l_c$  en fonction de la contrainte visqueuse  $\tau_{\text{visc}}$  :

$$l_c^2 \approx b \frac{\sigma}{\tau_{\text{visc}}}. \quad (10.8)$$

Pour de faibles vitesses, la contrainte visqueuse devient très petite et on trouve des longueurs caractéristiques  $l_c$  très larges (cf paragraphe 1.3). Dans la limite  $U \rightarrow 0$ ,  $l_c$  diverge. Ceci explique que dans un canal linéaire le doigt occupe pour des vitesses faibles toute la largeur du canal.

Pour un fluide à seuil, un raisonnement naïf nous conduit à remplacer la contrainte visqueuse  $\tau_{\text{visc}}$  par une expression de la forme :  $\tau = \tau_c + \eta (\dot{\gamma}) \dot{\gamma}$ , qui contient la contrainte seuil  $\tau_c$ . Contrairement à la contrainte visqueuse pour un fluide newtonien, on trouve pour un fluide à seuil une valeur finie pour  $\tau$  dans la limite  $U \rightarrow 0$ , égale à  $\tau_c$ . La longueur caractéristique pour un fluide à seuil s'écrit donc dans la limite  $U \rightarrow 0$  :

$$l_c \approx \sqrt{b \frac{\sigma}{\tau_c}}. \quad (10.9)$$

On constate que cette longueur atteint une valeur finie pour  $U = 0$ . De plus elle est proportionnelle à  $\sqrt{b}$  et contient la contrainte seuil  $\tau_c$ .

L'analyse de stabilité plus détaillée de Coussot [27] donne l'expression suivante pour la longueur caractéristique  $l_c$  dans un fluide à seuil :

$$l_c = 2\pi \sqrt{\frac{3b\sigma}{2\tau_c}}. \quad (10.10)$$

ce qui est en accord avec le résultat de l'équation (10.9). Shull *et al.* [81] et Fields *et al.* [33] prédisent également un résultat de la forme de l'équation (10.9) pour la longueur caractéristique de l'instabilité.

Dans le paragraphe suivant nous allons tester la validité expérimentale de l'équation (10.10) dans le régime de seuil.

### 10.3.2 Comparaison avec les résultats expérimentaux

Comme nous l'avons montré au début de ce paragraphe, la contrainte seuil domine les contraintes visqueuses dans le régime de seuil. On peut donc identifier la largeur des doigts dans ce régime, au moins directement après la déstabilisation, avec la longueur caractéristique de l'instabilité de l'analyse linéaire. Ceci permet de comparer nos résultats expérimentaux à la prédiction théorique.

Nous avons réalisé des expériences de digitation visqueuse dans le gel en faisant varier la géométrie (largeur et épaisseur) de la cellule de Hele-Shaw. Pour chaque géométrie,

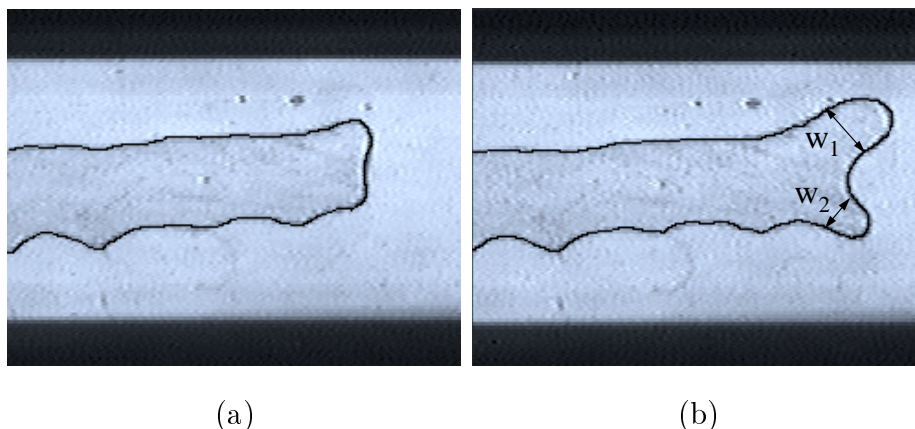


FIG. 10.5: a) Doigt juste avant la séparation en deux et b) juste après. Les flèches indiquent la largeur  $w$  des deux doigts.

nous avons mesuré la largeur des doigts en fonction de leur vitesse. La largeur des doigts

est déterminée de la façon suivante : dans le régime de seuil, les doigts se séparent répétitivement en deux. Avant cette séparation, le bout du doigt s'aplatit et forme ainsi une interface presque plane (Fig. 10.5 (a)). Une déstabilisation de cette interface donne ensuite lieu à la formation de deux nouveaux doigts. Leur largeur est déterminée juste après la déstabilisation (Fig. 10.5 b). On se place ainsi le plus près possible d'une situation décrite par une analyse de stabilité linéaire. Les résultats pour la largeur  $w$  ainsi obtenus sont représentés en fonction de la vitesse comme nous l'avons montré pour une géométrie particulière sur la figure 10.4. Le régime de seuil est identifié pour ces expériences comme étant le régime où la largeur des doigts est indépendante de leur vitesse. La largeur des doigts pour les différentes géométries est obtenue comme la valeur moyenne dans ce régime et est présentée en fonction de  $\sqrt{b}$  sur la figure 10.6. On constate que la largeur des doigts

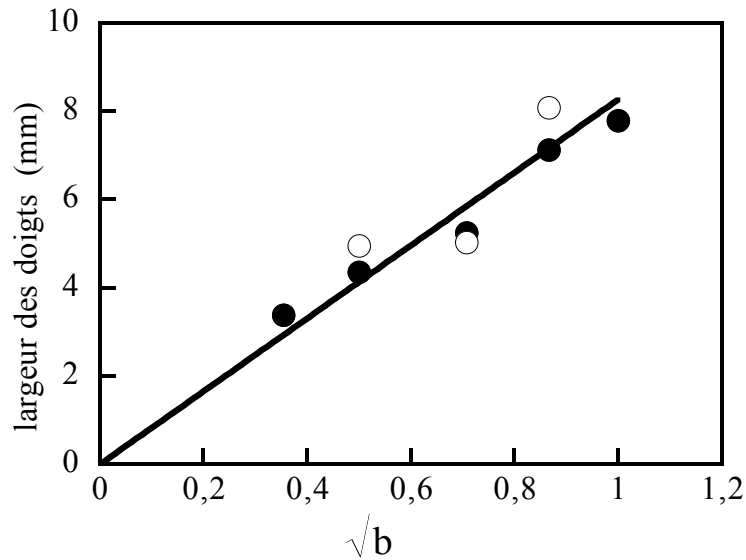


FIG. 10.6: *Largeur  $w$  des doigts en fonction de  $\sqrt{b}$  dans le gel pour une largeur du canal de  $W = 4$  cm ( $\bullet$ ) et  $W = 2$  cm ( $\circ$ ). Le trait représente un fit linéaire.*

est une fonction linéaire de  $\sqrt{b}$  et est indépendante de la largeur du canal, comme prédit par l'équation (10.10). Plus quantitativement, on peut calculer la contrainte seuil à partir de la pente de la droite  $w(\sqrt{b})$  à l'aide de l'équation 10.10. En identifiant la largeur des doigts  $w$  avec  $l_c/2$ , on obtient  $\tau_c = 15$  Pa, ce qui est en excellent accord avec la valeur de  $\tau_c = 16 \pm 2$  Pa obtenue par des mesures rhéologiques. Le comportement des doigts dans le régime près du seuil est donc bien décrit par l'analyse linéaire du problème de Saffman-Taylor [27] dans un fluide à seuil.

## 10.4 Le régime visqueux

Le régime visqueux se manifeste pour des vitesses de doigts plus élevées ( $U > 0.1$  cm/s) et par conséquent, les contraintes visqueuses dominent la contrainte seuil :  $\frac{k_1 \dot{\gamma}^n}{\tau_c} \gg 1$ . De plus, la viscosité qui s'écrit, en négligeant la contrainte seuil,  $\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = k_1 \dot{\gamma}^{n-1}$  est dans ce régime fortement rhéofluidifiante avec  $n = 0.38$ .

On s'attend donc dans ce régime, à un comportement des doigts similaire à celui rencontré dans un fluide visqueux, rhéofluidifiant. On observe en effet un seul doigt au milieu de la cellule dont la largeur décroît avec la vitesse comme pour un doigt visqueux classique. De plus, la largeur relative des doigts peut atteindre des valeurs nettement en dessous de la limite classique de  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse. Ceci est une caractéristique de l'instabilité dans les fluides rhéofluidifiants qui a été démontrée dans le chapitre 8. Les

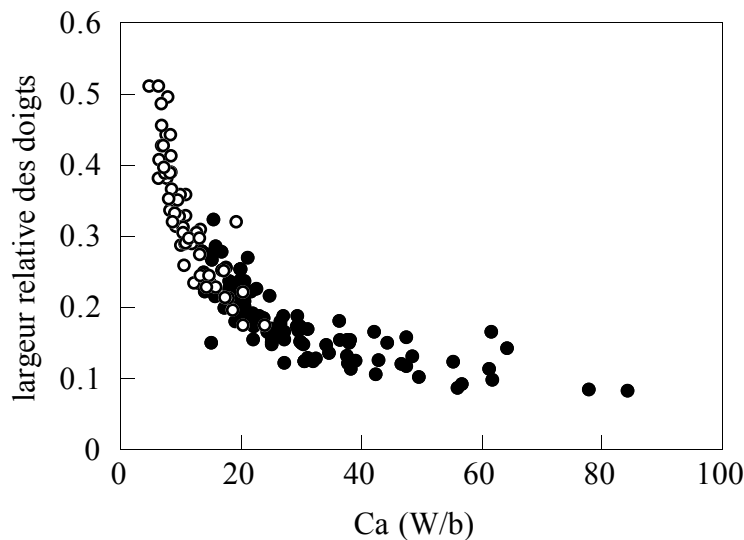


FIG. 10.7: Largeur relative  $\lambda$  des doigts en fonction de  $(1/B)^* = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)$  pour une largeur du canal de  $W = 4$  cm ( $\bullet$ ) et  $W = 2$  cm ( $\circ$ ).

observations des doigts dans le régime visqueux d'un fluide à seuil correspondent donc qualitativement bien à celles faites dans un fluide rhéofluidifiant (chapitre 8).

Il n'est cependant pas possible d'obtenir une courbe universelle en représentant les valeurs de la largeur relative  $\lambda$  obtenues dans les différentes géométries pour le gel en fonction du paramètre  $1/B = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)^2$ . On obtient par contre une courbe maîtresse en traçant les valeurs  $\lambda$  en fonction de  $(1/B)^* = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)$  (Fig. 10.7).

Nous allons vérifier si ce nouveau paramètre  $(1/B)^*$  peut être obtenu à partir de l'expression de la longueur  $l_c$  pour un fluide à seuil dans le régime de seuil. Le paramètre  $1/B$  pouvant être défini comme une mesure de l'écart entre la longueur caractéristique

$l_c$  et la largeur de la cellule  $W$  (cf paragraphe 1.4) :  $1/B \sim \left(\frac{W}{l_c}\right)^2$ , une modification de  $l_c$  entraîne donc une modification de  $1/B$ . Dans le paragraphe 10.3.1, nous avons montré que pour un fluide à seuil,  $l_c$  est proportionnelle à  $\sqrt{b}$  au lieu de  $l_c \sim b$ , obtenu pour un fluide newtonien. Ceci mène à  $1/B \sim \frac{\tau_c W^2}{\sigma b}$  pour un fluide à seuil. On constate que la dépendance de  $1/B$  par rapport à l'épaisseur de la cellule  $b$  est modifiée par rapport au résultat classique  $1/B = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)^2$ . La dépendance par rapport à la largeur du canal  $W$  est par contre inchangée. Le nouveau paramètre de contrôle  $(1/B)^* = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)$  observé lors des expériences dans le régime visqueux du gel ne s'obtient donc pas à partir de la longueur caractéristique  $l_c$  du régime près du seuil. Ce résultat soutient en effet l'hypothèse selon laquelle la contrainte seuil ne joue pas de rôle important dans le régime visqueux.

Les résultats dans le régime visqueux doivent donc plutôt être mis en relation avec des résultats obtenus dans les fluides rhéofluidifiants. En effet, dans le chapitre 9 nous avons observé pour une solution de polymères, dont la viscosité est fortement rhéofluidifiante, que les valeurs de  $\lambda$  obtenues pour dans différentes géométries se mettent également à l'échelle si elles sont tracées en fonction d'un paramètre identique à  $(1/B)^*$  (Fig. 9.9). Dans ce chapitre, la forme de  $(1/B)^*$  est expliquée par d'éventuels effets tridimensionnels intervenant dans l'instabilité. Ces effets pourraient être induits par la contrainte normale qui devient significative dans les solutions très concentrées de Xanthane.

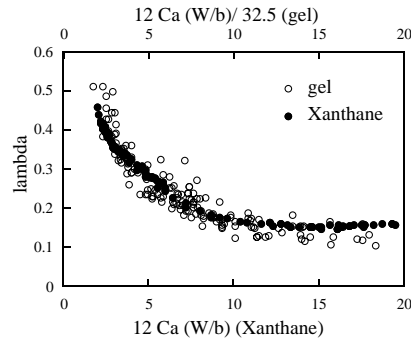


FIG. 10.8: Comparaison entre largeur relative  $\lambda$  en fonction de  $(1/B)^* = 12Ca \left(\frac{W}{b}\right)$  pour la solution de Xanthane de 3000 ppm ( $\bullet$ ) et  $\lambda$  en fonction de  $1/32.5(1/B)^*$  pour le gel ( $\circ$ ).

La pente  $n - 1$  de la viscosité rhéofluidifiante en fonction du cisaillement en échelle log-log est du même ordre de grandeur pour la solution de polymères (Xanthane, 3000 ppm) et pour le gel ( $n = 0.38$  pour le gel et  $n = 0.28$  pour la solution de Xanthane). Le caractère rhéofluidifiant des deux fluides est donc comparable. La viscosité du gel est cependant beaucoup plus élevée que celle de la solution de Xanthane. Ceci se traduit par un paramètre  $k_1$  du modèle en loi de puissance plus élevé pour le gel ( $k_1 = 3.8 \times 10^4$  pour

le gel et  $k_1 = 1.0 * 10^3$  pour la solution de Xanthane).

En comparant les résultats  $\lambda((1/B)^*)$  pour la solution de Xanthane et pour le gel, on constate que l'allure des deux courbes est similaire, mais que la courbe  $\lambda((1/B)^*)$  pour le gel est décalée vers des valeurs de  $(1/B)^*$  beaucoup plus élevées par rapport à celles de la solution de Xanthane. Les résultats pour ces deux fluides se mettent cependant à l'échelle si la largeur relative obtenue pour gel est tracée en fonction de  $\frac{1}{32.5} \left(\frac{1}{B}\right)^*$ . La courbe maîtresse ainsi obtenue est montrée sur la figure 10.8. Pour le moment, ce décalage entre les résultats  $\lambda((1/B)^*)$  obtenus dans le gel et la solution de Xanthane n'est pas clairement compris. Une explication possible pourrait être que des effets tridimensionnels, induits par la contrainte normale, sont aussi pour le gel à l'origine de la forme de  $(1/B)^*$ . Cette contrainte normale atteint pour le gel des valeurs significatives à vitesse élevée et est plus élevée pour le gel que pour les solutions de Xanthane. Ceci pourrait entraîner un décalage du paramètre  $(1/B)^*$ .

## 10.5 Autres fluides

### 10.5.1 La mousse

Nous avons répété les expériences de digitation visqueuse dans une mousse sous les mêmes conditions que dans le gel. Pour cela, nous utilisons une mousse commerciale : Gillette Foamy Regular.

La mousse est généralement considérée comme un fluide à seuil typique. On devrait donc retrouver dans la mousse le même comportement des doigts que dans le gel. Dans les expériences, ce comportement s'avère cependant très différent. Dans la mousse, on n'observe pas de structures ramifiées même à très basse vitesse, mais on observe toujours un seul doigt stable au milieu de la cellule. Ce doigt, probablement dû à la structure interne de la mousse, n'est pas parfaitement lisse et est légèrement ondulé le long de l'axe de la cellule, mais ressemble quand même fortement à un doigt visqueux classique. Ces observations qualitatives se reflètent dans les mesures de la largeur des doigts en fonction de leur vitesse (Fig. 10.4). On constate que la largeur des doigts décroît avec la vitesse dans toute la gamme de vitesses atteintes lors des expériences. Pour la mousse, le régime de seuil ne se manifeste pas et on observe uniquement le régime visqueux.

Des mesures rhéologiques éclaircissent l'origine de ce comportement inattendu.

Dans le paragraphe 5.3.6, nous avons montré qu'on ne détecte pas de seuil d'écoulement significatif lors des expériences de rhéologie dans une géométrie de mesure dont les surfaces sont lisses. Ce résultat varie considérablement si du papier de verre est collé sur les surfaces du système de mesure afin de les rendre rugueuses. Sous ces conditions, on mesure un seuil

très élevé  $\tau_c = 150$  Pa. Cette observation indique que la mousse est un fluide à seuil, mais que cette caractéristique peut être masquée par le glissement de la mousse sur les surfaces lisses.

Si l'on retourne maintenant à l'expérience de digitation, les plaques de verre de la cellule de Hele-Shaw représentent des surfaces lisses et favorisent ainsi le glissement de la mousse au niveau des parois. Comme dans le rhéomètre, ceci peut masquer le caractère de fluide à seuil de la mousse et expliquer, que lors des expériences de digitation visqueuse dans la mousse, on n'observe pas de régime de seuil mais uniquement le régime visqueux.

Nous avons essayé de sabler les plaques de verre afin de les rendre rugueuses. Mais ce traitement change les conditions de mouillage sur les plaques de telle façon qu'il n'est pas possible d'obtenir des doigts stables dans la mousse. Une expérience dans un liquide newtonien (un mélange eau, glycérol) dans la cellule ainsi traitée confirme les observations faites dans la mousse : le doigt n'est pas stable. On observe un ancrage de l'interface sur les rugosités des plaques sablées. Il n'est donc pas possible dans notre contexte d'utiliser une cellule dont les plaques ont été sablées pour des expériences de digitation visqueuse.

Durian *et al.* [68] ont également étudié l'instabilité de Saffman-Taylor dans une mousse (cf paragraphe 3.5.2). Ils observent en cellule radiale une transition entre des structures rugueuses à basse vitesse et des structures lisses à haute vitesse. Nous n'observons pas une transition de ce type dans nos expériences en cellule linéaire. De plus, nos expériences de digitation visqueuse dans la mousse montrent que les effets de bord jouent un rôle important lors de cette instabilité dans les fluides à seuil.

### 10.5.2 Le dentifrice et la crème

Nous avons cherché à tester la validité de l'analyse de stabilité linéaire (cf paragraphe 10.3.1) dans deux autres fluides à seuil : le dentifrice ("Colgate Total") et la crème ("Dierme Henkel, soin de jour"). Le dentifrice est une suspension de particules solides tandis que la crème est une émulsion d'huile dans de l'eau. Lors des expériences de digitation visqueuse dans ces deux fluides, on observe, comme auparavant, des structures très ramifiées à basse vitesse correspondant au régime de seuil. On observe aussi une transition vers le régime visqueux où un seul doigt se propage au milieu de la cellule pour des vitesses plus élevées. On peut voir sur la figure 10.9 les largeurs  $w$  des doigts obtenues pour la crème et le dentifrice dans le régime de seuil en fonction de la racine de l'épaisseur de la cellule  $\sqrt{b}$ . On constate que dans ces deux fluides aussi,  $w$  est une fonction linéaire de  $\sqrt{b}$  comme prédit par la théorie (cf équ. (10.10)). Notons que la détermination du seuil d'écoulement pour la mousse et le dentifrice, dû à la viscosité élevée de ces deux fluides, est beaucoup plus difficile que pour le gel. Nous obtenons donc seulement des valeurs ap-



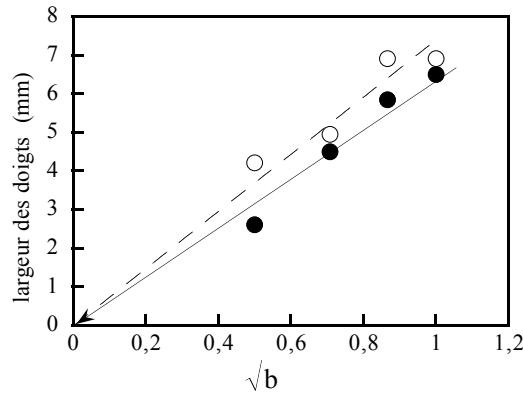


FIG. 10.9: La largeur des doigts  $w$  en fonction de  $\sqrt{b}$  pour la crème ( $\circ$ ) et le dentifrice ( $\bullet$ ) et un fit linéaire pour la crème (—) et le dentifrice (- -).

proximatives qui indiquent que le seuil de ces deux fluides est du même ordre de grandeur et vaut approximativement  $\tau_c = 25$  Pa. En calculant  $\tau_c$  à partir des pentes des droites  $w(\sqrt{b})$  de la figure 10.9 à l'aide de l'équation (10.10), on obtient  $\tau_c = 20$  Pa pour le gel et  $\tau_c = 22$  Pa pour la crème. Ces valeurs sont, à la précision de nos mesures en accord avec les résultats rhéologiques.

Les résultats obtenus dans le dentifrice et la crème confirment donc la validité des prédictions théoriques de l'analyse de stabilité linéaire pour le fluide à seuil.

## 10.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats d'une étude de l'instabilité de Saffman-Taylor dans un fluide à seuil. Pour engendrer un mouvement dans un tel fluide, il faut dépasser une contrainte critique  $\tau_c$ . En dessous de cette contrainte critique, le fluide à seuil se comporte comme un solide élastique alors qu'au dessus il se comporte comme un fluide visqueux dont la viscosité est dans beaucoup de cas rhéofluidifiante. Un tel comportement est décrit par le modèle de Herschel-Bulkley (équation 2.17) pour la contrainte :  $\tau = \tau_c + k_1 \dot{\gamma}^n$ . Nous avons réalisé des expériences dans un gel. Des mesures rhéologiques de la contrainte en fonction du cisaillement (paragraphe 5.3.2) ont montré que ce gel est un fluide à seuil dont le comportement est bien décrit par le modèle de Herschel-Bulkely.

Avant d'étudier la digitation visqueuse dans ce fluide à seuil, nous avons discuté la modification de la loi de Darcy pour un tel fluide. Nous avons montré que la loi de Darcy non-newtonienne (équation 7.5) obtenue pour un fluide uniquement rhéofluidifiant décrit bien la vitesse des doigts en fonction du gradient de pression appliqué, observée dans nos

expériences.

Lors des expériences de digitation visqueuse dans le gel, on observe deux régimes différents : le régime basse vitesse, où il y a formation des structures très ramifiées, et qui est appelé régime de seuil et le régime haute vitesse, où on observe un seul doigt stable au milieu de la cellule, et qui est appelé régime visqueux.

Dans le régime de seuil, la contrainte seuil est dépassée de très peu, c'est à dire  $\tau_c \gg k_1 \dot{\gamma}^n$  et joue un rôle important pour l'instabilité. On observe la formation de structures très ramifiées de doigts qui se séparent répétitivement en deux. De plus, on voit régulièrement deux doigts qui se propagent en parallèle dans la cellule. La largeur de ces doigts ne dépend pas de leur vitesse, ni de la largeur de la cellule mais augmente avec l'épaisseur de la cellule. L'observation de bulles d'air figées dans le gel montrent que, pendant la croissance des doigts, la contrainte seuil n'est pas dépassée partout dans la cellule, et par conséquent un doigt ne sent pas forcément les bords de la cellule, ni la présence d'un autre doigt. Ceci explique que, dans ce régime de seuil, deux doigts peuvent se propager en parallèle dans la cellule et que leur largeur est indépendante de la largeur du canal. Les résultats obtenus pour la largeur des doigts en fonction de la contrainte seuil et de l'épaisseur de la cellule sont en très bon accord avec les prédictions théoriques d'une analyse de stabilité linéaire menée par Coussot [27]. Cette analyse de stabilité linéaire montre de plus que la largeur caractéristique de l'instabilité pour un fluide à seuil reste, contrairement au cas newtonien, finie dans la limite de vitesse nulle. Ceci concorde avec la formation de structures très ramifiées de doigts avec une largeur caractéristique indépendante de leur vitesse dans le régime basse vitesse.

Quand la vitesse des doigts augmente, on observe une transition vers le régime visqueux où un doigt commence à écranter les autres et continue ensuite de se propager de façon stable, seul au milieu de la cellule. Dans ce régime, la contrainte seuil est dominée par les contraintes visqueuses :  $\tau_c \ll k_1 \dot{\gamma}^n$  et le fluide montre donc les caractéristiques d'un fluide rhéofluidifiant. La valeur  $n = 0.38$  indique un fluide fortement rhéofluidifiant. Les résultats de digitation visqueuse, obtenus dans le régime visqueux d'un fluide à seuil, ressemblent en effet aux résultats obtenus dans les fluides rhéofluidifiants décrits dans les chapitres 8 et 9 : la largeur relative  $\lambda$  des doigts décroît avec leur vitesse et peut atteindre des valeurs nettement plus petites que la limite newtonienne de  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse. De plus, les valeurs de  $\lambda$  obtenues pour différentes géométries de la cellule se mettent à la même échelle si elles sont représentées en fonction du nouveau paramètre  $(\frac{1}{B})^* = 12Ca(\frac{W}{b})$ . Dans le chapitre précédent, nous avons montré que  $(\frac{1}{B})^*$  est aussi paramètre de contrôle de l'instabilité dans une solution de polymères dont la viscosité est fortement rhéofluidifiante. Les résultats expérimentaux de la forme  $\lambda(\frac{1}{B})^*$  pour le gel et la solution de Xanthane suivent une courbe maîtresse si les valeurs de  $(\frac{1}{B})^*$  pour le

Xanthane sont multipliées par  $\frac{1}{32}$ . Cette observation n'est pas encore clairement comprise.

Des expériences de digitation visqueuse dans deux autres fluides à seuil, le dentifrice et la crème, confirment les observations faites pour le gel. Une étude de l'instabilité dans une mousse révèle par contre un comportement différent : même à très basse vitesse, on n'observe pas de structures ramifiées, mais uniquement un doigt stable au milieu de la cellule. Le régime de seuil ne se manifeste pas. Des mesures rhéologiques montrent que le caractère de fluide à seuil de la mousse peut être masqué par le glissement de la mousse sur les parois. La même chose se produit sur les plaques lisses de la cellule de Hele-Shaw et explique le fait qu'on observe uniquement le régime visqueux dans les expériences de digitation visqueuse dans la mousse. Ceci montre que les conditions aux bords ont une grande influence sur l'instabilité de Saffman-Taylor dans un fluide à seuil.

L'étude de la digitation visqueuse dans un fluide à seuil était entre autre motivée par l'observation de structures fractales ou de doigts ressemblant à des fractures dans des matériaux comme par exemple les argiles, qui possèdent parmi d'autres propriétés non-newtoniennes un seuil d'écoulement. Cette caractéristique pouvait donc à priori être à l'origine des structures observées. Nous n'avons cependant pas observé de telles structures dans nos expériences. De plus, la formation de structures ramifiées dans les fluides à seuil que nous avons examinés intervient à faible vitesse et disparaît quand celle-ci augmente. La formation de structures fractales observées dans les expériences citées ci-dessus est cependant généralement intensifiée quand la vitesse augmente et la transition vers des doigts qui ressemblent à des fractures se manifeste typiquement comme une instabilité secondaire à haute vitesse. La formation de structures fractales ou de doigts ressemblant à des fractures apparaît ainsi comme un phénomène très différent de la formation de structures ramifiées dans le gel et ne peut donc pas être uniquement expliquée par l'existence d'une contrainte seuil.

# Chapitre 11

## Le fluide “élastique”

Dans ce chapitre, nous allons étudier l’instabilité de Saffman-Taylor dans les solutions diluées de PEO. Dans les chapitres 5 et 6, nous avons montré que les solutions de PEO sont seulement très peu rhéofluidifiantes, mais aussi qu’elles présentent des effets élastiques importants, comme une contrainte normale élevée ou une viscosité élongationnelle élevée. Bonn *et al.* [13] ont montré que les doigts dans une solution de PEO et une solution de Xanthane, préparée de façon à avoir les mêmes viscosités faiblement rhéofluidifiantes, présentent des comportements très différents. Les solutions ayant une viscosité très proche de celle de l’eau, on observe à vitesse égale des doigts plus larges que dans l’eau pour les solutions de PEO, tandis qu’on observe des doigts plus fins pour la solution de Xanthane. Dans le chapitre 8, nous avons montré que cet amincissement des doigts dans les solutions de Xanthane est dû au caractère rhéofluidifiant des solutions. L’observation d’un élargissement des doigts dans les solutions de PEO indique que la viscosité faiblement rhéofluidifiante des solutions ne domine pas le comportement des doigts dans les solutions de PEO et que les effets élastiques, importants dans ces solutions, et négligeables dans les solutions de Xanthane, sont responsables de l’élargissement des doigts. Nous allons dans ce chapitre approfondir l’étude de l’instabilité dans ces solutions qui présentent des effets élastiques. Une partie de ces résultats se trouve aussi dans Lindner *et al.* [59].

### 11.1 La loi de Darcy pour un fluide élastique

Comme nous l’avons fait pour les solutions rhéofluidifiantes de Xanthane (chapitre 7), et pour le fluide à seuil (10.1) nous allons d’abord étudier la loi de Darcy pour les solutions de PEO. Nous répétons, que cette loi, introduite au chapitre 1, relie le gradient de pression, appliqué entre l’entrée et la sortie de la cellule, à la vitesse du doigt et qu’elle constitue une des équations de base permettant de décrire l’instabilité. Pour un fluide

newtonien elle s’écrit (équation 1.1) :

$$\mathbf{V} = -\frac{b^2}{12\eta} \nabla p \quad (11.1)$$

où  $V$  est relié à la vitesse  $U$  du doigt par la relation  $V = \lambda U$ . Nous avons réalisé des mesures de la vitesse  $U$  du doigt en fonction de la pression  $p$  appliquée entre l’entrée et la sortie de la cellule. Nous avons expliqué, lors de la discussion de la loi de Darcy pour les solutions de Xanthane (chapitre 7), qu’on peut déduire des résultats sous la forme  $V(\nabla p)$  de ces mesures. Pour les solutions de PEO d’une concentration de 50 ppm et de 250 ppm, ces résultats ainsi qu’un fit linéaire sont présentés sur la figure 11.1. On constate que la

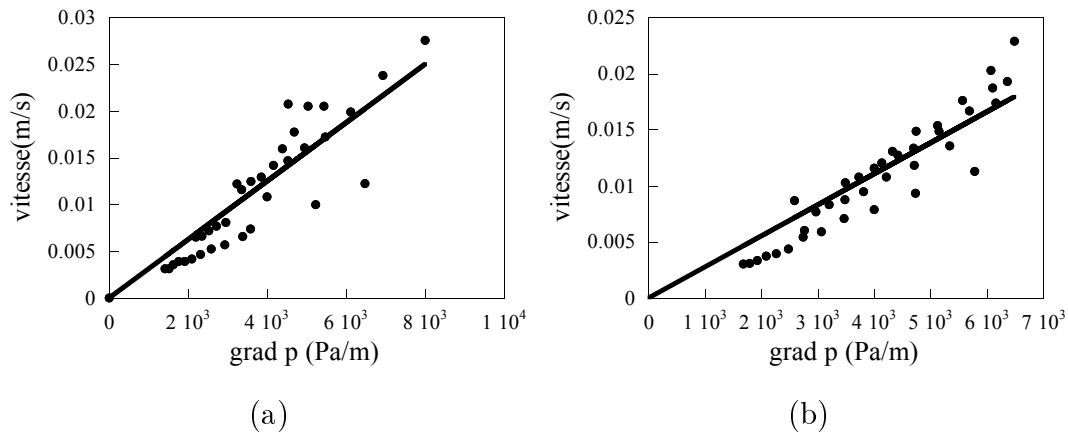


FIG. 11.1: *Vitesse  $V$  loin devant le doigt en fonction du gradient de pression appliqué pour (a) une solution de PEO de 50 ppm et (b) une solution de PEO de 250 ppm. Le trait représente un fit linéaire .*

vitesse peut, dans la précision de nos mesures, être décrite comme une fonction linéaire du gradient de pression comme c’est le cas pour un fluide newtonien. Ceci est en accord avec l’observation que la viscosité des solutions de Xanthane est, pour les faibles concentrations que nous étudions ici, quasiment newtonienne. Nous avons montré (chapitre 6) que, dans cette gamme de concentrations, le comportement rhéologique des solutions de PEO peut être décrit par le modèle de Oldroyd-B. Ce modèle prédit une viscosité  $\eta$  constante et une contrainte normale  $N_1(\dot{\gamma})$  quadratique en  $\dot{\gamma}$  :

$$\eta = \eta_s + n k_B T \tau \quad (11.2)$$

$$N_1 = 2 n k_B T \tau^2 \dot{\gamma}^2 \quad (11.3)$$

où  $\eta_s$  est la viscosité du solvant ( $\eta_s = 1$  mPa s pour l’eau),  $n$  la densité en nombre de polymères et  $k_B T$  l’énergie thermique. Ce modèle contient un paramètre ajustable, le

temps de relaxation  $\tau$ . Dans le chapitre 6, nous avons déterminé sa valeur en fonction de la concentration des solutions de PEO (tableau 6.2).

On peut maintenant faire une comparaison quantitative des résultats  $V(\nabla p)$  et de la loi de Darcy pour un fluide newtonien (équation 11.1) évoquée ci dessus. Du fit linéaire des données  $V(\nabla p)$ , découle pour la viscosité de la solution de PEO de 250 ppm,  $\eta = 1.76 \pm 0.35$  mPa s, en bon accord avec le résultat découlant du modèle FENE  $\eta = 1.43$  mPa s. Pour la solution de PEO de 50 ppm, on obtient  $\eta = 1.39 \pm 0.32$  mPa s d'après le fit des données  $V(\nabla p)$  en bon accord avec  $\eta = 1.09$  mPa s découlant du modèle FENE. La vitesse des doigts en fonction du gradient de pression appliqué est donc dans les solutions de faible concentration de PEO bien décrite par la loi de Darcy newtonienne.

Nous pouvons ainsi exclure une éventuelle influence de la viscosité élongationnelle sur l'instabilité. Lors d'une expérience de digitation visqueuse, on peut imaginer un écoulement élongationnel local, autour de la pointe du doigt qui avance dans le liquide remplissant la cellule de Hele-Shaw. Ceci pourrait entraîner une manifestation de la viscosité élongationnelle. Plus loin devant le doigt, l'écoulement peut être décrit comme un écoulement de cisaillement simple. La viscosité élongationnelle a été déterminée dans le chapitre 6 pour les solutions de PEO. On voit sur la figure 6.3 qu'elle peut atteindre des valeurs qui sont de plusieurs ordres de grandeur plus grandes que la viscosité  $\eta$ . L'effet de la viscosité élongationnelle lors de la croissance de doigts en cellule de Hele-Shaw devrait donc considérablement modifier la relation entre la vitesse des doigts et le gradient de pression appliqué. Par contre, nous observons que cette relation est bien décrite par une loi de Darcy newtonienne en tenant compte uniquement de la viscosité  $\eta$ , et nous pouvons donc exclure l'influence de la viscosité élongationnelle sur l'instabilité. Nous supposons donc que l'effet dominant parmi les effets élastiques est la contrainte normale. Étant perpendiculaire à la direction de l'écoulement, celle-ci n'a pas d'influence directe sur la loi de Darcy. Dans la suite nous allons étudier l'effet de cette contrainte normale sur l'instabilité de Saffman-Taylor dans les solutions de PEO.

## 11.2 La largeur des doigts en fonction de leur vitesse

Dans une cellule de Hele-Shaw rectangulaire de largeur  $W = 4$  cm et d'épaisseur  $b = 0.25$  mm, nous avons mesuré la largeur relative des doigts  $\lambda$ , en fonction de la vitesse  $U$  dans des solutions de PEO, à différentes concentrations. On peut observer les résultats déterminés pour les concentrations de 50 ppm et 250 ppm en PEO, ainsi que ceux pour l'eau pure sur la figure 11.2. Dans les solutions de PEO, ayant une viscosité comparable à celle de l'eau, on observe des doigts plus larges que dans l'eau à vitesse égale. Pour la

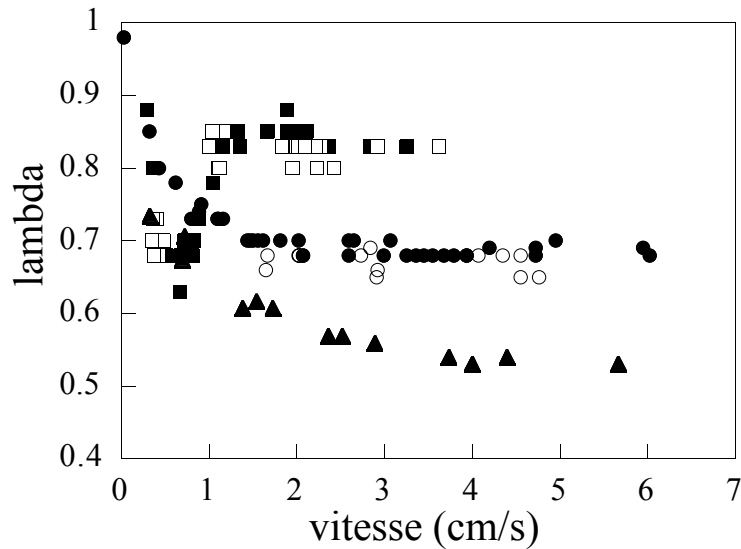


FIG. 11.2: La largeur relative  $\lambda$  en fonction de la vitesse  $U$  pour des doigts dans de l'eau ( $\Delta$ ) et une solution de PEO de 50 ppm ( $\bullet$ ) et de 250 ppm ( $\blacksquare$ ) et pour des bulles dans une solution de PEO de 50 ppm ( $\circ$ ) et de 250 ppm ( $\square$ )

concentration de 50 ppm, la largeur des doigts décroît avec la vitesse et semble se stabiliser sur un plateau autour de  $\lambda = 0.65$ . A faible vitesse, les doigts ont une largeur identique à celle observée dans de l'eau à vitesse égale. Pour des vitesses plus élevées, on observe des doigts légèrement plus larges dans le PEO. Pour la concentration de 250 ppm on observe à faible vitesse également une décroissance de  $\lambda$  avec  $U$ . De plus,  $\lambda$  devient inférieure aux résultats obtenus pour la concentration de 50 ppm et à ceux obtenus dans l'eau. Pour des vitesses un peu plus élevées,  $\lambda$  croît brusquement et se stabilise à vitesse élevée sur un plateau plus élevé que celui pour la concentration de 250 ppm, autour de  $\lambda = 0.85$ . Notons que les valeurs qu'on voit sur la figure 11.2 sont représentées jusqu'à la vitesse maximale pour laquelle on observe des doigts stables, et ce pour les deux solutions.

Dans la suite de ce chapitre, nous essayerons de comprendre cet élargissement des doigts en cellule de Hele-Shaw.

## 11.3 Expériences avec des bulles d'air

### 11.3.1 Bulles dans un capillaire

Bonn *et al.* [13] ont effectué une étude dans un système plus simple : ils ont étudié le déplacement de bulles d'air de longueur finie dans un capillaire circulaire rempli par des solutions de PEO. Cette situation est comparable à un doigt dans une cellule de Hele Shaw,

qui peut être vu comme une bulle infinie se déplaçant dans un capillaire rectangulaire. Le système de bulles dans le capillaire circulaire permet de visualiser assez facilement le film de fluide restant entre la bulle d'air et la paroi du capillaire. De plus, Bretherton [16] a déterminé une expression analytique (équation (1.17)) de l'épaisseur  $t_B$  de ce film dans la limite des faibles nombres capillaires  $Ca$  :

$$\frac{t_B}{R} = 0.643 (3 Ca)^{2/3} \quad (11.4)$$

où  $R$  est le rayon du capillaire. Cette loi a été introduit dans le chapitre 1. Pour la géométrie simple du capillaire circulaire, la connaissance de l'épaisseur de ce film donne la largeur des bulles.

Bonn *et al.* [13] ont étudié l'évolution de l'épaisseur de ce film en fonction de la vitesse des bulles pour différents concentrations de PEO en solution. La figure 11.3 montre

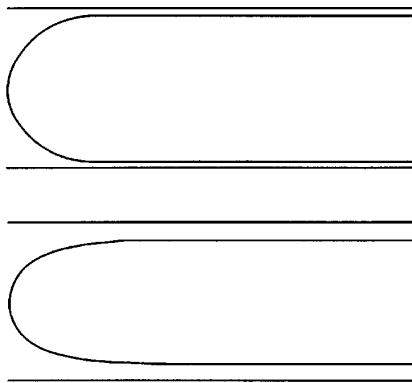


FIG. 11.3: La forme de l'extrémité de deux bulles, à une vitesse  $U = 45 \text{ cm/s}$ , dans une solution de Xanthane (8 ppm, haut) et dans une solution de PEO (50 ppm, bas) d'après Bonn *et al.* [13]. La viscosité des deux solutions est identique et très proche de celle de l'eau. L'épaisseur du film de la bulle dans la solution de Xanthane est identique à celle dans l'eau tous paramètres étant égaux par ailleurs. Au contraire, on observe un épaissement dramatique du film pour les bulles dans la solution de PEO.

deux bulles à vitesse égale, dans une solution de PEO (50 ppm) et dans une solution de Xanthane (8 ppm). Les deux solutions ont quasiment la même viscosité, très proche de celle de l'eau. La forme de la bulle observée dans la solution de Xanthane est identique à celle observée sous les mêmes conditions mais pour de l'eau. On constate, que la bulle dans la solution de PEO est étroite et allongé tandis que la bulle dans la solution de Xanthane occupe presque tout le capillaire. Les auteurs ont comparé les résultats exacts de l'épaisseur  $t$  en fonction de la vitesse avec la loi de Bretherton (équation 11.4). Ils



montrent que cette loi est en bon accord avec les résultats obtenus pour de l’eau et la solution de Xanthane. Pour les solutions de PEO, on observe des épaisseurs beaucoup plus larges, en désaccord avec la loi de Bretherton. Cette épaisseur augmente avec la vitesse et la concentration des solutions.

Bonn *et al.* [13] expliquent cet épaissement du film par la contrainte normale qui se manifeste dans les solutions de PEO cisailées. Le cisaillement se manifeste principalement dans le film entre la bulle et la paroi, et entraîne une contrainte normale élevée qui exerce une pression supplémentaire sur le film. Cette pression supplémentaire comprime la bulle, qui devient plus allongée, et augmente ainsi le rayon de courbure à la pointe de la bulle. Bonn *et al.* [13] proposent de déterminer la valeur de la contrainte normale en la comparant avec la pression capillaire supplémentaire induite par ce changement du rayon de courbure :

$$\Delta P_c = \frac{2\sigma}{R-t} - \frac{2\sigma}{R} \quad (11.5)$$

où  $R$  est le rayon du capillaire et  $t$  l’épaisseur du film. Dans ce calcul, le film très fin déjà formé pour les bulles dans l’eau est négligé. La contrainte normale découle maintenant de :  $N_1 = \Delta P_c$ . En supposant des conditions à l’interface rigide, Bonn *et al.* [13] peuvent calculer le cisaillement dans le film en fonction de la vitesse des bulles  $\dot{\gamma} \sim U/t$ . L’hypothèse de conditions à l’interface rigide est justifiée par le fait qu’on observe une diminution de 14 % de la tension de surface pour les solutions de PEO par rapport à celle de l’eau. Ceci indique qu’une couche de polymères est adsorbée à l’interface des bulles, et peut ainsi entraîner des conditions à l’interface rigide [55]. Il est maintenant possible d’obtenir des résultats sous la forme  $N_1(\dot{\gamma})$  à partir des mesures de  $t(U)$ . Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus par des mesures rhéologiques [13].

Dans le cas du doigt de Saffman-Taylor dans la cellule de Hele-Shaw, un mécanisme similaire pourrait aussi créer un épaissement du film de mouillage restant entre le doigt et les parois. Cet épaissement du film pourrait entraîner un changement de la largeur des doigts, et ainsi être responsable de l’élargissement observé dans les solutions de PEO. Nous allons par la suite tester cette hypothèse.

### 11.3.2 Bulles dans la cellule de Hele-Shaw

Dans l’expérience des bulles dans le capillaire, la contrainte normale, qui induit l’épaississement du film, a pour origine un cisaillement élevé dans ce dernier. La présence d’un tel cisaillement est moins évidente pour un doigt dans la cellule de Hele-Shaw, car l’arrière du doigt est immobile. Nous avons donc effectué une étude de bulles finies se déplaçant dans la cellule de Hele-Shaw. Pour cela, dans la cellule de Hele-Shaw, nous créons un écoulement des solution de PEO dans lequel nous injectons de l’air de sorte

que de longues bulles se forment. Ces bulles sont ensuite entraînées par l'écoulement. Nous considérons seulement des bulles dont la longueur vaut au moins 5 fois la largeur, afin de ne pas avoir d'effet de taille finie. Nous avons réalisé des expériences dans des solutions de PEO (50 ppm et 250 ppm) à différentes vitesses. Les résultats obtenus pour les bulles ainsi que pour les doigts sont présentés sur la figure 11.2. On constate que la largeur relative des bulles rapportée à la largeur du canal, en fonction de la vitesse, est identique à celle observée pour les doigts. On peut donc supposer un cisaillement identique dans le film de mouillage restant entre l'air et la paroi dans les deux cas. Ceci nous mène à l'hypothèse que l'épaisseur de ce film pourrait aussi être augmentée dans le cas d'un doigt qui croit en cellule de Hele-Shaw, similaire à ce qui a été observé pour les bulles. Par la suite, nous essayerons de mesurer l'épaisseur de ce film.

## 11.4 L'épaisseur du film

Les mesures de l'épaisseur du film de mouillage restant entre le doigt et les parois de la cellule de Hele-Shaw se sont avérées nettement plus difficiles que pour les bulles dans le capillaire, car l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw ainsi que l'épaisseur du film sont très faibles par rapport aux dimensions du capillaire. Des mesures de l'épaisseur du film pour des doigts dans des huiles de silicone ont été réalisées par Tabeling *et al.* [86, 87]. Pour nos mesures, nous avons adopté la technique interférométrique utilisée par ces auteurs. Dans la suite, nous décrirons d'abord la méthode expérimentale utilisée pour nos mesures, puis nous donnerons les résultats obtenus dans les solutions de PEO.

### 11.4.1 Méthode expérimentale

Quand un faisceau laser est envoyé vers une cellule de Hele-Shaw vide (Fig. 11.4 a) il y a une première réflexion à l'interface verre-air (du haut) et une deuxième réflexion à l'interface air-verre (du bas). Ceci produit une différence de phase  $\delta$  entre les deux faisceaux réfléchis, qui vaut en fonction de l'épaisseur  $b$  de la cellule et l'angle d'incidence  $\Theta$  [41] :

$$\delta = \frac{4\pi n}{\lambda_0} b \cos \Theta \pm \pi \quad (11.6)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction de l'air et  $\lambda_0$  la longueur d'onde du faisceau laser. L'interférence entre les deux faisceaux lasers détermine l'intensité de la lumière réfléchie [41] :

$$I^2 = I_1^2 + I_2^2 + I_1 I_2 \cos(\delta) \quad (11.7)$$

où  $I_1$  et  $I_2$  sont respectivement les intensités des deux faisceaux laser. Il y a ainsi formation de franges d'interférence en fonction de l'angle d'incidence  $\Theta$ , permettant de déterminer

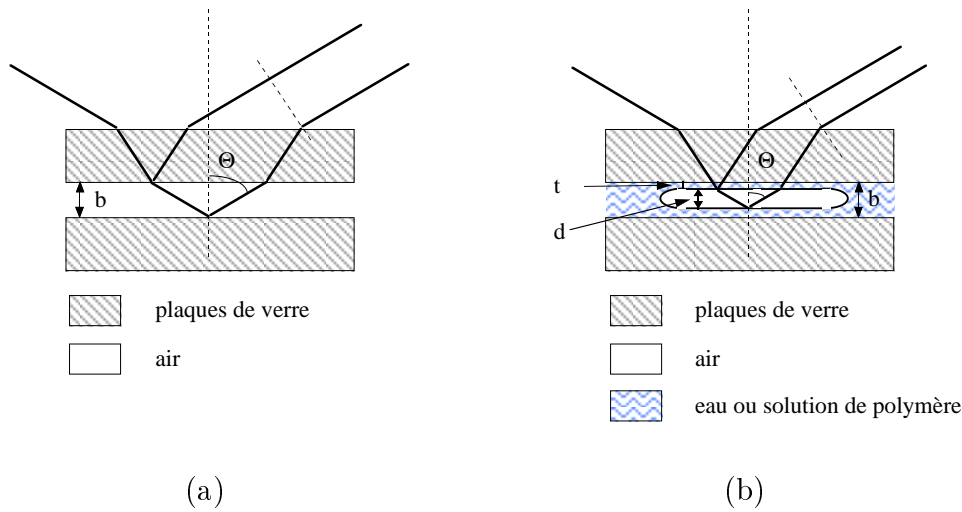


FIG. 11.4: Le chemin optique. a) Un faisceau laser qui est envoyé vers une cellule de Hele-Shaw vide est réfléchi une première fois à l'interface verre-air (du haut) et une deuxième fois à l'interface air-verre (du bas). Ceci produit une différence de phase  $\delta$  entre les deux faisceaux réfléchis en fonction de l'épaisseur  $b$  de la cellule et l'angle d'incidence  $\Theta$ , permettant de déterminer  $b$ . b) Pour une cellule remplie avec un fluide, on observe en présence d'un doigt, une première réflexion à l'interface eau-air (du haut) et une deuxième réflexion à l'interface air-eau (du bas). Le film de mouillage diminue l'intervalle entre les deux interfaces réfléchissantes, par rapport à la cellule vide. On peut ainsi déterminer l'épaisseur de l'intervalle  $d$ , et indirectement l'épaisseur du film  $t = \frac{b-d}{2}$ .

l'épaisseur  $b$  de l'intervalle. Notons que ces franges ne sont pas équidistantes car la différence de phases  $\delta$  dépend de  $\cos \Theta$ .

Quand la cellule est remplie avec de l'eau, ou avec une solution de PEO, dû au voisinage des indices de réfraction de l'eau et du verre ( $n_{\text{eau}} = 1.33$  et  $n_{\text{verre}} = 1.46$  [41]) il n'y a presque pas de réflexion. Par contre, quand le doigt passe devant le faisceau laser, on observe de nouveau une première réflexion à l'interface eau-air (du haut) et une deuxième réflexion à l'interface air-eau (du bas) (Fig. 11.4 b). Le film de mouillage diminue l'intervalle entre les deux interfaces réfléchissantes, par rapport à la cellule vide. On peut ainsi déterminer l'épaisseur de l'intervalle  $d$ , et indirectement l'épaisseur du film  $t = \frac{b-d}{2}$ . Comme l'épaisseur du film  $t$  est déterminée de façon indirecte, et comme son épaisseur est faible devant l'épaisseur du doigt  $d$ , ceci demande une grande précision sur la mesure de  $d$ . Mais l'observation des bulles dans un capillaire, discutée au paragraphe précédent, indique une grande variation de l'épaisseur du film, et nous considérons donc cette méthode adaptée à la détermination des changements de l'épaisseur du film en cellule de Hele-Shaw.

Le montage expérimental est schématisé sur la figure 11.5. Un faisceau laser est envoyé à un angle donné  $\alpha$  vers la cellule de Hele-Shaw. Nous utilisons un laser de longueur d'onde  $\lambda_0 = 632.8$  nm. Le faisceau laser passe par un "speckle", puis par deux filtres polarisés qui permettent, en changeant l'angle d'un filtre par rapport à l'autre, de régler l'intensité du faisceau laser. Un système de lentilles élargit le faisceau laser et permet ensuite de le focaliser au niveau de l'intervalle entre les deux plaques. On envoie ainsi un faisceau laser compris dans une certaine gamme d'angles d'incidence  $\Theta$  au voisinage de l'angle  $\alpha$  vers les plaques. Une caméra, qui se trouve au même angle  $\alpha$  par rapport aux plaques que le laser, enregistre l'intensité de la lumière réfléchie. On enregistre cette intensité sur tout l'angle d'ouverture de la caméra, ce qui correspond à une certaine gamme d'angles de réflexion  $\Theta$  (Fig. 11.4). On enregistre ainsi une image de franges d'interférence.

Avant le passage du doigt, la cellule est entièrement remplie par de l'eau et il n'y a donc pas d'interférence. Au moment où le doigt passe des franges apparaissent sur l'écran. Nous enregistrons simultanément aux franges d'interférence le mouvement du doigt dans

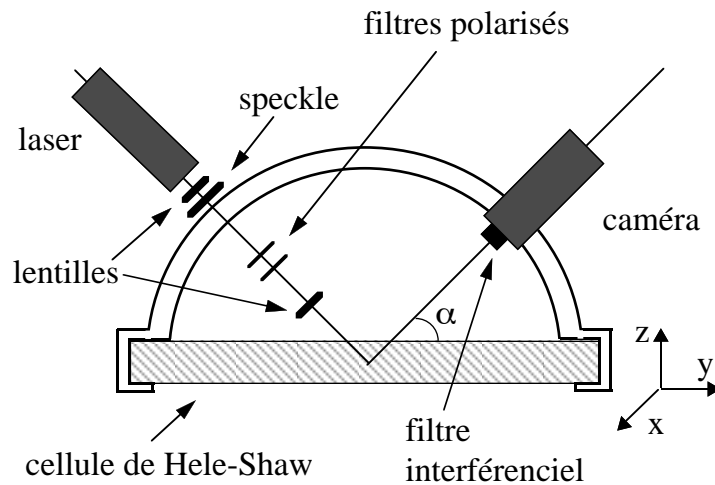


FIG. 11.5: *Le montage expérimental. Un faisceau laser est envoyé à un angle donné  $\alpha$  vers les plaques. Le faisceau laser passe par un "speckle" et ensuite par deux filtres polarisés qui permettent, en changeant l'angle d'un filtre par rapport à l'autre, de régler l'intensité du faisceau laser. Un système de lentilles élargit le faisceau laser et permet ensuite de le focaliser au niveau de l'intervalle entre les deux plaques. On envoie ainsi un faisceau laser compris dans une certaine gamme d'angles d'incidence  $\Theta$  au voisinage de  $\alpha$  vers les plaques. Une caméra, qui se trouve également à un angle  $\alpha$ , enregistre les franges d'interférences qui se produisent en fonction de l'angle de réflexion  $\Theta$ .*

la cellule. Les deux magnétoscopes, enregistrant le mouvement du doigt et les franges d’interférence, sont équipés d’un chronomètre, celui ci est déclenché au même moment. Ceci permet de synchroniser les deux enregistrements. Il est ainsi possible de déterminer la vitesse  $U$  du doigt au moment où celui passe devant le faisceau laser.

Les enregistrements des franges sont ensuite traités à l’aide du logiciel “NIH-Image”. Une image de franges juste après le passage du doigt est sélectionnée et une coupe de cet image de taille de 750 x 400 pixels est choisie au milieu de l’enregistrement, pour éviter des déformations éventuelles vers les bords de l’image. Une telle coupe est montrée sur la figure 11.6. L’axe horizontal de cette image correspond à l’axe  $z$  de la figure 11.4. L’angle

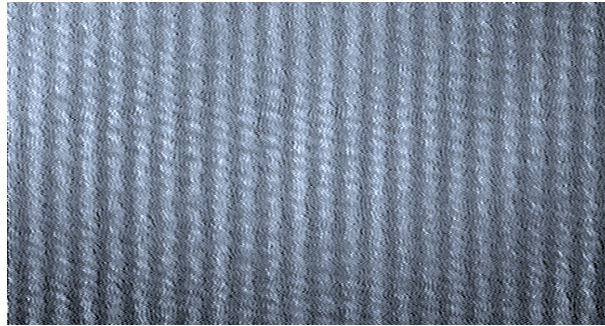


FIG. 11.6: Une image des franges d’interférence enregistrées par la caméra juste après le passage du bout du doigt devant le faisceau laser. L’axe horizontal correspond à l’axe  $z$  de la figure 11.4 tandis que l’axe vertical correspond à l’axe  $x$ .

$\Theta$  de réflexion varie donc de droite à gauche sur l’image. Si nécessaire, cette image est ensuite faiblement tournée pour ajuster l’orientation des franges, perpendiculairement à l’axe  $z$ . L’image est exportée de “NIH-Image” en format “raw pixel data” pour pouvoir être lue par le logiciel “Mathematica”.

Dans “Mathematica” les données, sous forme d’intensité en fonction des coordonnées  $(z,x)$  en pixels, sont moyennées suivant la direction  $x$ . Ceci mène à des données de la forme intensité en fonction de l’axe  $z$  en pixels (fig. 11.7). Nous répétons que l’axe  $z$  correspond à une variation de l’angle de réflexion  $\Theta$ . Le fait de moyenner sur l’axe  $x$  permet d’obtenir une plus grande précision sur les données par rapport à l’utilisation d’une seule ligne horizontale de l’image 11.6. On constate sur la figure 11.7a que l’intensité de fond varie selon l’axe  $z$ . Pour s’affranchir de cette variation, nous faisons un fit avec une fonction, dépendant de la forme de cette variation, et soustrayons ensuite cette variation du fond de nos résultats. Pour l’exemple de la figure 11.7a nous avons tenu compte de la variation de fond de l’intensité en faisant un fit par une fonction cosinus. On obtient alors les résultats montrés sur la figure 11.7b. Nous faisons ensuite un fit de ces données par une fonction

de la forme :

$$f(z) = I_1 \cos(c_0 + c_1 z) \quad (11.8)$$

où nous négligeons la variation de la distance entre les franges. Ceci signifie que nous remplaçons, dans l'expression de la différence de phase  $\delta$  (équation 11.6), le terme  $\cos \Theta$  par un terme proportionnel à  $\Theta$ . Cette approximation est valable pour une gamme d'angles de réflexion  $\Theta$  pas trop large, et donc pour un nombre de franges pas trop élevées. Il serait aussi possible de faire un fit en utilisant la fonction exacte pour  $\delta$  (équation (11.7)) qui tient compte de la variation de la distance entre les franges. Cependant, nous avons constaté qu'il est difficile de faire un fit avec cette équation compliquée et que ceci n'améliore pas vraiment les résultats. De ce fit des données par l'expression (11.8) on obtient  $c_1$ . Comme  $c_1 z$  est proportionnel à la différence de phase  $\delta$  (équation 11.6), qu'on suppose être une fonction linéaire de  $\Theta$ ,  $c_1 z$  est aussi proportionnel à l'épaisseur  $d$  du doigt. Nous déterminons ce paramètre  $c_1$  d'abord pour la cellule vide :  $c_{1,\text{vide}}$ . Ce paramètre  $c_{1,\text{vide}}$  est utilisé comme référence pour les autres mesures. On détermine ainsi  $d$  comme un pourcentage de l'épaisseur de la cellule  $b$  que nous allons supposer égale à  $b = 250\mu\text{m}$ . L'erreur sur cette détermination est estimée à 1.5 %. Ainsi pour une cellule d'épaisseur

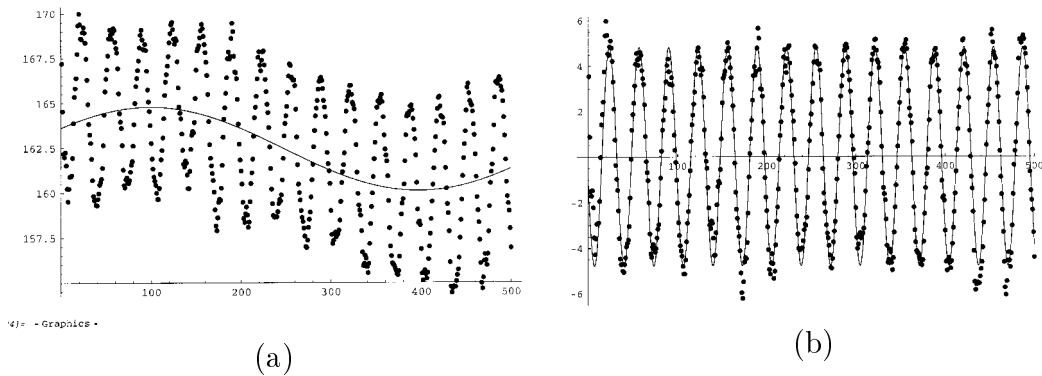


FIG. 11.7: *Intensité des franges d'interférences en fonction de l'axe  $z$  en pixels. a) Sans correction de la variation de l'intensité du fond, qui est représentée par le trait et b) avec correction de la variation de l'intensité du fond. Le trait représente un fit par l'expression  $f(z) = I_1 \cos(c_0 + c_1 z)$ .*

$b = 250\mu\text{m}$  on a une erreur de  $3.8\mu\text{m}$ . Ceci entraîne une erreur de  $1.9\mu\text{m}$  sur l'épaisseur de chacun des deux films. Nous déterminons ainsi l'épaisseur du film  $t = \frac{b-d}{2}$  en fonction de la vitesse  $U$  du doigt.

### 11.4.2 Résultats expérimentaux

Sur la figure 11.8, on voit les résultats obtenus pour l'épaisseur du film  $t$  en fonction de la vitesse  $U$  des doigts pour une solution de PEO de 250 ppm. On constate que l'épaisseur du film est très faible et fluctue autour de  $2 \mu\text{m}$ . On n'observe pas de dépendance de  $t$  en

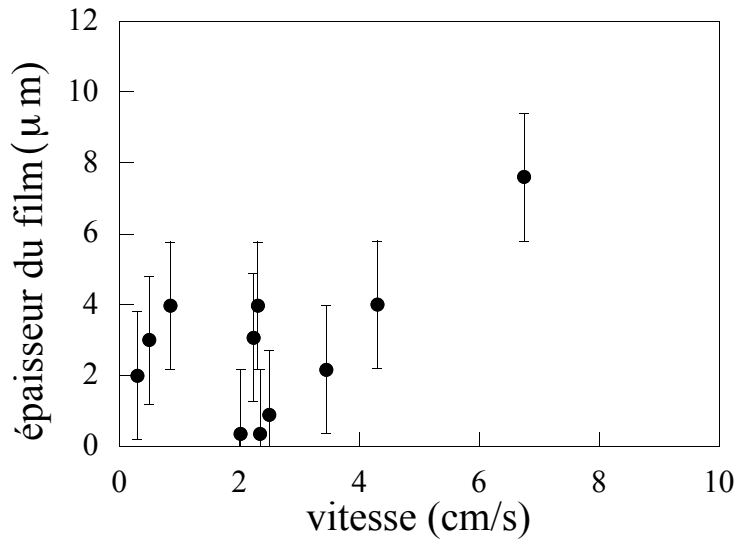


FIG. 11.8: Épaisseur du film en fonction de la vitesse pour une solution de PEO de 250 ppm.

fonction de  $U$  dans la précision de nos mesures. Si on met ces résultats  $t(U)$  en relation avec les résultats concernant la largeur des doigts en fonction de la vitesse  $\lambda(U)$  (Fig. 11.2), on ne peut pas détecter une variation de l'épaisseur du film selon l'endroit où on se trouve sur la courbe  $\lambda(U)$  : des valeurs de  $t$  provenant de la région où  $\lambda$  décroît avec  $U$ , de la région où  $\lambda$  remonte avec  $U$  ou de la région où  $\lambda$  se stabilise sur un plateau sont toutes du même ordre de grandeur. On constate aussi que la mesure de l'épaisseur du film à  $U = 7 \text{ cm/s}$  correspond à un doigt instable. C'est typiquement sous ces conditions que nous avons observé des valeurs un peu plus élevées pour l'épaisseur du film. L'erreur sur les mesures est relativement grande et a été estimée au paragraphe précédent à  $1.9 \mu\text{m}$ , ce qui est du même ordre de grandeur que les mesures.

Nous allons maintenant comparer les résultats que nous avons obtenus, à la loi de Bretherton pour les fluides newtoniens. Comme nous l'avons expliqué au paragraphe 1.6, cette loi s'applique aussi aux doigts dans une cellule de Hele-Shaw, mais la vitesse  $U$  doit être remplacé par  $U_n$  qui désigne la vitesse normale à l'interface. Ceci entraîne une épaisseur du film variable à travers la largeur de la cellule (Fig. 1.9c). L'épaisseur du film est maximale au milieu du doigt, où la vitesse  $U_n$  est égale à  $U$ . Nous avons essayé de placer au mieux notre faisceau, afin de mesurer le film à cet endroit, et nous n'avons jamais bougé

le laser lors d'une même série d'expériences. On voit sur la figure 11.9 l'épaisseur  $t$  du film

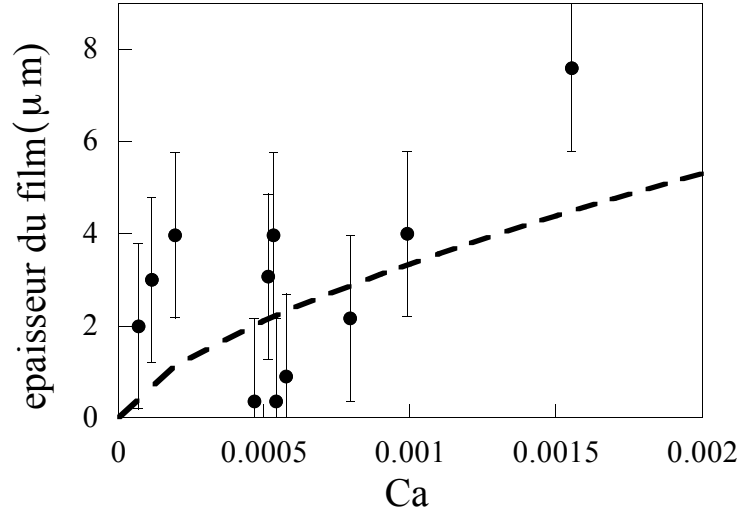


FIG. 11.9: *Épaisseur du film en fonction du nombre capillaire  $Ca$  pour une solution de PEO de 250 ppm. La loi de Bretherton (équation 11.4) pour les fluides newtoniens est figurée par le trait pointillé. On constate que, dans la précision de nos mesures, nous ne pouvons pas détecter de différence entre nos mesures et la loi de Bretherton.*

en fonction du nombre capillaire  $Ca = \eta U / \sigma$  pour la solution de 250 ppm correspondant aux résultats exposés sur la figure 11.8. La tension de surface pour les solutions de PEO varie peu dans la gamme de concentrations que nous utilisons est  $\sigma = 63$  mN/m [13]. La viscosité  $\eta$  est comme auparavant calculée d'après le modèle Oldroyd-B (équation (11.2)) :  $\eta = \eta_s + n k_B T \tau$  où le paramètre  $\tau$  a été déterminé au chapitre 6 (tableau 6.2). On constate que, dans la précision de nos mesures, nous ne pouvons pas détecter de différence entre nos mesures et la prédiction de la loi de Bretherton pour les fluides newtoniens. Notons que nous sommes dans le régime à faible nombre capillaire  $Ca < 10^{-2}$  où la loi de Bretherton est valable pour les fluides newtoniens [86].

Nous avons effectué de nombreuses vérifications de ce résultat plutôt inattendu comparé aux résultats obtenus dans le capillaire cylindrique. Premièrement, nous avons testé la validité de notre méthode expérimentale en répétant des mesures faites par Tabeling *et al.* [86] dans des huiles de silicone. Nous obtenons un bon accord. Ces mesures faites dans des huiles ont l'avantage de ne pas être affectés par des problèmes de mouillage du fluide sur les plaques qui peuvent intervenir pour de l'eau et des solutions aqueuses de polymères et ainsi perturber le film. Nous avons donc essayé d'améliorer le mouillage de l'eau sur les plaques de la cellule de Hele-Shaw. Nous avons acheté de nouvelles plaques de verre, que nous avons uniquement utilisées pour les expériences dans les solutions de PEO. De plus,



nous les avons nettoyé minutieusement (par exemple, avec un mélange sulfocromique ou avec une solution dite “piranhia” (un mélange d’acide sulfurique et d’eau oxygénée)), afin de rendre les surfaces de la cellule mouillantes. Après un tel nettoyage des plaques, celles-ci étaient immédiatement couvertes de l’eau pour éviter tout contact avec l’air. Les résultats obtenus dans une cellule dont les plaques ont été nettoyées de cette façon ne sont pas différents de ceux montrés sur la figure 11.8. Nous avons aussi essayé de polir les plaques, ce qui devrait favoriser le mouillage de l’eau sur les plaques. Ce traitement n’a également pas changé les observations faites. Nous avons de plus augmenté la concentration de nos solutions de PEO jusqu’à 1000 ppm, et avons étudié l’épaisseur du film pour des bulles dans une cellule de Hele-Shaw. Dans aucun cas, nous n’observons une augmentation significative de l’épaisseur du film.

Nous concluons donc, que l’épaisseur du film de mouillage restant entre le doigt et les parois de la cellule de Hele-Shaw pour les solutions de PEO, est très voisine de celle observée avec de l’eau pure. Ce résultat est très différent du fort épaissement du film observé pour les bulles dans un capillaire circulaire. La différence fondamentale entre ces deux géométries est que, pour les bulles dans le capillaire circulaire, le film qui entoure la bulle est partout de la même épaisseur tandis que pour le doigt dans la cellule de Hele-Shaw un tel film se forme uniquement dans la direction de l’épaisseur de la cellule entre le doigt et les plaques de verre. La couche de liquide qui reste entre le doigt et les bords du canal, dans la direction de la largeur de la cellule, est très épaisse (de l’ordre de grandeur de la largeur du canal). C’est à dire de plusieurs ordres de grandeur plus épaisse que le film restant entre le doigt et les plaques de verre. La contrainte normale, résultant du cisaillement faible dans la direction de la largeur de la cellule, peut ainsi être négligée devant la contrainte normale qui se manifeste dans le film. Cette différence pourrait être à l’origine du comportement très différent concernant l’épaisseur du film, observé lors des expériences dans un capillaire circulaire et une cellule de Hele-Shaw. L’épaissement du film n’est donc pas à l’origine de l’élargissement des doigts dans les solutions de PEO comme postulé auparavant.

Une analyse de l’épaisseur du film dans un fluide élastique a été faite par Ro *et al.* [74]. Ils utilisent le modèle Oldroyd-B pour décrire le comportement de ce fluide. Nous avons montré au chapitre 6 que les solutions de PEO sont, dans la gamme de concentrations utilisée dans nos expériences, bien décrites par ce modèle. Leur analyse prédit un léger amincissement du film dans les fluides élastiques par rapport à l’épaisseur du film obtenu dans de l’eau. Leurs résultats s’appliquent à un régime de faible nombre capillaire  $Ca$  et de faible nombre de Weissenberg  $We$ . Nous avons montré ci-dessus que nos expériences sont effectuées dans la gamme des faibles nombres capillaires  $Ca$ . Le nombre de Weissenberg est une mesure de l’importance des effets élastiques et est définie [74] comme le rapport

entre un temps de relaxation des polymères  $\tau$ , et un temps caractéristique de l'écoulement donné par  $1/\dot{\gamma}$  :  $We = \tau\dot{\gamma}$ . Pour le temps de relaxation des polymères  $\tau = 0.0029$  obtenu dans le cadre du modèle Oldroyd-B, pour les solutions de PEO de concentration inférieure à 500 ppm (tableau 6.2), et un cisaillement typique de nos expériences en cellule de Hele-Shaw, de l'ordre de  $500 \text{ s}^{-1}$  (correspondant à une vitesse de  $U = 4 \text{ cm/s}$ ), on trouve un nombre de Weissenberg  $W$  de l'ordre de 1. Ce nombre de Weissenberg ne peut donc pas être considéré comme étant petit pour nos expériences. Nos conditions expérimentales se trouvent donc à la limite de validité de cette théorie. A la précision de nos mesures près, nous ne pouvons pas confirmer un amincissement du film par rapport au film dans l'eau, mais nous ne pouvons pas non plus l'exclure. Cependant, il n'existe sûrement pas d'épaississement significatif de ce film comme observé par Bonn *et al.* [13] lors de leurs expériences sur les bulles dans le capillaire circulaire.

## 11.5 Le paramètre de contrôle $1/B$

Bien que nous n'ayons pas pu détecter un effet de la contrainte normale sur le film de mouillage restant entre le doigt et les parois de la cellule de Hele-Shaw, nous restons dans l'hypothèse que celle-ci est importante, et supposons qu'elle exerce tout de même une pression supplémentaire sur le doigt. Nous allons dans ce paragraphe modifier le paramètre de contrôle de l'instabilité  $1/B = 12 (W/b)^2 \eta U / \sigma$  afin de tenir compte de cette pression supplémentaire.

Nous discutons d'abord des résultats concernant la largeur relative des doigts en fonction du paramètre  $1/B$  non modifié. Nous utilisons, comme pour la détermination de  $Ca$  au paragraphe précédent,  $\sigma = 63 \text{ mPa/m}$  et calculons la viscosité d'après le modèle Oldroyd-B (équation 11.2). On voit, sur la figure 11.10, les résultats obtenus pour  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  non modifié pour des solutions de PEO de 5 ppm, 50 ppm et 500 ppm dans une cellule de largeur  $W = 4 \text{ cm}$  et d'épaisseur  $b = 0.5 \text{ mm}$  et pour 50 ppm pour une largeur du canal  $W = 4 \text{ cm}$  et une épaisseur  $b = 0.25 \text{ mm}$ , ainsi que la courbe universelle de McLean et Saffman [64] pour les fluides newtoniens. Nous avons choisi ici les concentrations et la géométrie de la cellule de sorte qu'on n'observe pas de remontée de  $\lambda$  en fonction de  $U$ , comme cela peut être le cas par exemple pour la concentration de 250 ppm dans une cellule de  $W = 4 \text{ cm}$  et de  $b = 0.25 \text{ mm}$  (Fig. 11.2). On constate que les résultats pour les différentes concentrations et les différentes géométries ne se mettent pas à l'échelle s'ils sont représentés en fonction du paramètre  $1/B$  non modifié. On observe également que ces résultats ne coïncident pas avec la courbe universelle de McLean et Saffman, mais se trouvent à des valeurs plus élevées de  $\lambda$ . Seuls les résultats de  $\lambda$  pour de

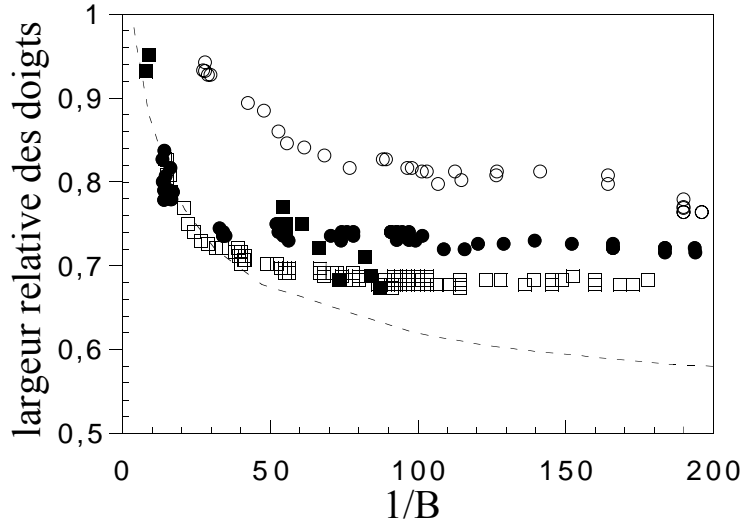


FIG. 11.10: La largeur relative  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  non modifié pour des solutions de PEO de 5 ppm ( $\square$ ), 50 ppm ( $\bullet$ ) et 500 ppm ( $\circ$ ) dans une cellule de largeur  $W = 4$  cm et d'épaisseur  $b = 0.5$  mm et pour 50 ppm ( $\blacksquare$ ) pour une largeur du canal  $W = 4$  cm et une épaisseur  $b = 0.25$  mm. Les pointillés représentent la courbe universelle de McLean et Saffman [64] (—). On constate que les résultats expérimentaux ne se mettent pas à l'échelle.

faibles concentrations et des  $1/B$  faibles se trouvent sur cette courbe universelle. On constate de nouveau une déstabilisation des doigts à des valeurs de  $1/B$  relativement faibles :  $(1/B)_{\text{crit}} \sim 200$ . Pour de telles valeurs de  $1/B$ , les doigts dans un fluide newtonien sont stables. Dans ce cas on observe, selon le niveau de bruit dans la cellule, une déstabilisation pour  $(1/B)_{\text{crit}} = 5000$  [66]. Des telles observations d'une déstabilisation des doigts pour à des  $1/B$  inférieure à  $(1/B)_{\text{crit}} = 5000$  ont également été faites par Vlad *et al.* [94] sur des solutions du polymère PIB dans du kerosene. Les auteurs attribuent cette déstabilisation à un effet de contrainte normale.

Nous allons maintenant corriger le paramètre  $1/B$  par la tension supplémentaire que la contrainte normale exerce sur le doigt. Pour cela, nous calculons la contrainte normale  $N_1(\dot{\gamma})$  dans le film de mouillage en fonction de la vitesse  $U$  du doigts à l'aide de l'équation (11.2) du modèle de Oldroyd-B :  $N_1 = 2n k_B T \tau^2 \dot{\gamma}^2$ . Nous utilisons des conditions à l'interface rigide comme dans l'étude des bulles dans le capillaire réalisé par Bonn *et al.* [13], et supposons donc que le cisaillement  $\dot{\gamma}$  est proportionnel à  $U/t_B$  avec un facteur de proportionnalité  $\alpha$ . Nous utilisons, pour l'épaisseur du film  $t_B$ , la loi de Bretherton pour les fluides newtoniens (équation 11.4) :

$$\dot{\gamma} = \alpha \frac{U}{t} \quad (11.9)$$

La contrainte normale exerce une pression supplémentaire sur le doigt, qui se rajoute à la pression capillaire dans la direction de l'épaisseur de la cellule. Le saut de pression à l'interface s'écrit donc comme :

$$\Delta p = \sigma \kappa + \sigma \frac{2}{b} \left( 1 + N_1 \frac{b}{2\sigma} \right) \quad (11.10)$$

Comme pour un fluide newtonien, on considère ici que le rayon de courbure dans l'épaisseur de la cellule  $2/b$  est constant, et le terme  $\sigma \frac{2}{b}$  n'apparaît pas dans le paramètre  $1/B$ . De façon analogue à Tabeling *et al.* [87] (cf paragraphe 1.6), on peut tenter d'introduire les effets de  $N_1$  dans une tension de surface effective  $\sigma^*$  qui s'écrit sous la forme :

$$\sigma^* = \sigma + N_1 (\dot{\gamma}) \frac{b}{2} \quad (11.11)$$

En remplaçant  $\sigma$  par  $\sigma^*$  dans le paramètre de contrôle  $1/B$  on obtient :

$$\left( \frac{1}{B} \right)_{\text{corr}} = 12 \left( \frac{W}{b} \right)^2 \frac{\eta U}{\sigma + b/2N_1 (\dot{\gamma})} \quad (11.12)$$

On constate que les résultats concernant  $\lambda$  obtenus dans des solutions de différentes concentrations et dans des géométries du canal différentes se mettent tous à l'échelle avec la courbe universelle de McLean et Saffman [64], s'ils sont tracés en fonction de  $(1/B)_{\text{corr}}$  (Fig. 11.11). Les valeurs de  $\lambda$  se stabilisent sur un plateau correspondant à un  $\lambda$  légèrement plus élevé que la courbe universelle de McLean et Saffman. Pour le moment, nous ne savons pas si cette déviation à la courbe universelle des fluides newtoniens est induite par les propriétés non-newtoniennes des fluides, ou si elle est simplement due à la présence d'impuretés dans la cellule. Nous avons expliqué, au chapitre 8, que ces impuretés peuvent être à l'origine d'un faible élargissement des doigts.

La valeur de  $\alpha$  pour laquelle les courbes se mettent le mieux à l'échelle est  $\alpha = 2.8$  où le paramètre  $\alpha$  définit la proportionnalité entre le cisaillement  $\dot{\gamma}$  dans le film et  $U/t_B$ . Ceci signifie que  $\dot{\gamma} = U/t_B$  prédit un cisaillement légèrement trop faible dans le film. Ceci peut être dû au fait que l'épaisseur du film n'est pas parfaitement identique aux prédictions de Bretherton. Un film plus mince, comme par exemple prédit par l'analyse de Ro *et al.* [74], pourrait entraîner un cisaillement plus élevé dans le film. De plus, dans notre analyse, nous avons pour le moment considéré l'épaisseur maximale du film prédite par l'équation de Bretherton, atteinte seulement au milieu du doigt. Tabeling *et al.* [87] donnent l'expression suivante pour la forme du film :  $t = t_B \cos(y\pi/(\lambda w))^{2/3}$ , où l'axe  $y$  désigne la direction de la largeur du doigt (Fig. 1.9). En moyennant sur cette épaisseur, on obtient :  $t_{\text{moy}} = 0.7t_B$ . Ceci entraîne aussi un cisaillement légèrement plus élevé dans le film. De plus, il est possible que les conditions à l'interface rigide ne soient pas vérifiées. Ceci entraînera par contre un cisaillement plus faibles dans le film.

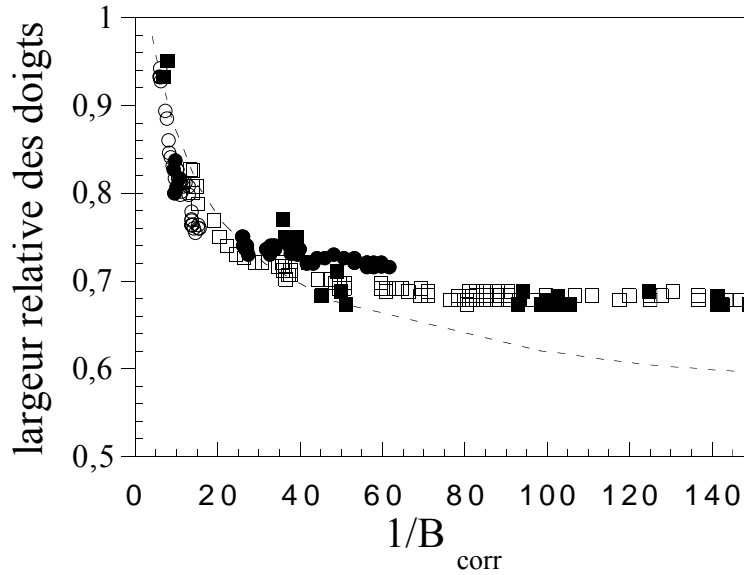


FIG. 11.11: La largeur relative  $\lambda$  en fonction de  $1/B_{\text{corr}}$ . On tient compte de la pression supplémentaire exercée par la contrainte normale pour des solutions de PEO de 5 ppm ( $\square$ ), 50 ppm ( $\bullet$ ) et 500 ppm ( $\circ$ ) dans une cellule de largeur  $W = 4$  cm et d'épaisseur  $b = 0.5$  mm et pour 50 ppm ( $\blacksquare$ ) pour une largeur du canal  $W = 4$  cm et une épaisseur  $b = 0.25$  mm. Les pointillés représentent la courbe universelle de McLean et Saffman [64] (—). Les résultats expérimentaux se trouvent sur la courbe universelle de McLean et Saffman à faible  $1/B$ .

Même si nous n'arrivons pas à calculer exactement le cisaillement dans le film de mouillage, le fait que notre estimation du cisaillement  $\dot{\gamma} = U/t_B$  doit être corrigée par le même facteur  $\alpha = 2.8$  pour les différentes concentrations et géométries, indique que nous avons introduit correctement la pression supplémentaire exercée sur le doigt par la contrainte normale dans le paramètre de contrôle  $1/B$ .

Jusqu'à maintenant nous avons seulement traité les résultats  $\lambda(1/B_{\text{corr}})$  qui ne montrent pas de remontée de  $\lambda$  pour des  $1/B_{\text{corr}}$  élevés. Ces résultats sont obtenus pour des situations où il n'y a pas d'effets élastiques trop importants. C'est à dire pour des faibles concentrations ( $c \leq 50$  ppm) où, dans la gamme de cisaillements observés dans nos expériences, les effets élastiques ne sont pas trop prononcés ou pour des cellules avec une épaisseur plus large, ce qui réduit le cisaillement observé dans les expériences, et ainsi les effets élastiques ( $c = 500$  ppm et  $b = 0.5$  mm) (Fig. 11.10).

Nous allons maintenant discuter des résultats concernant  $\lambda$  en fonction de  $1/B_{\text{corr}}$  obtenus pour une solution de PEO de 250 ppm, et une cellule d'épaisseur  $b = 0.25$  mm. Pour des  $1/B_{\text{corr}}$  plus élevés on constate (Fig. 11.12) que les résultats ne se trouvent pas sur la courbe universelle de McLean et Saffman. Pour des  $1/B_{\text{corr}}$  faibles,  $\lambda$  se trouve

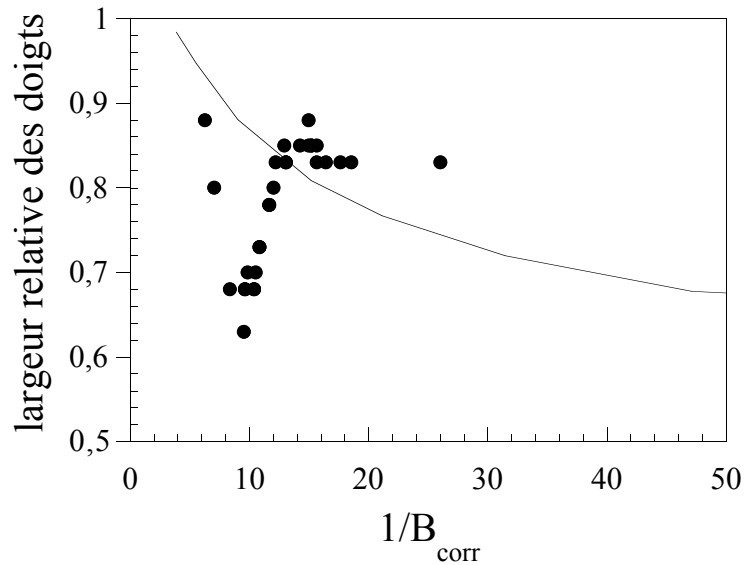


FIG. 11.12: La largeur relative  $\lambda$  en fonction de  $1/B_{\text{corr}}$ , pour une solution de PEO de 250 ppm dans un canal de  $W = 4$  cm et de  $b = 0.25$  mm ( $\bullet$ ), ainsi que la courbe universelle de McLean et Saffman [64] pour les fluides newtoniens ( $-$ ). Les résultats expérimentaux ne se trouvent pas sur la courbe universelle de McLean et Saffman.

en dessous de cette courbe, pour ensuite remonter vers des valeurs plus élevées et se stabiliser à  $1/B_{\text{corr}}$  élevé sur un plateau, dont la valeur est plus élevée que la courbe universelle pour les fluides newtoniens. Pour le moment, nous ne savons pas expliquer ce comportement. Malheureusement, il y a très peu de théories qui traitent l'instabilité de Saffman-Taylor dans des fluides élastiques. Nous avons déjà évoqué les analyses de Ro *et al.* [74] concernant l'épaisseur du film restant entre le doigt et les parois de la cellule de Hele-Shaw. Nos expériences se trouvent à la limite de validité de leur analyse. Il serait intéressant d'élargir leur étude à des nombres de Weissenberg de l'ordre de 1, tout en restant dans la limite des faibles nombres capillaires. Une analyse de Wilson *et al.* [96] traite également le cas d'un fluide dans le cadre du modèle Oldroyd-B. Aucune de ces analyses ne contient de prédictions concernant la largeur des doigts en fonction de  $1/B$ . Une telle prédiction concernant la largeur des doigts dans un fluide élastique a été faite par de Gennes [31]. Cette analyse traite cependant le cas de deux fluides miscibles dans une géométrie radiale. Elle ne s'applique donc pas à notre étude. Des efforts expérimentaux et théoriques sont donc encore nécessaires pour comprendre en détail ce comportement.

## 11.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'influence des effets élastiques, notamment des contraintes normales élevées et d'une viscosité élongationnelle élevées sur l'instabilité de Saffman-Taylor. Pour cela, nous avons réalisé des expériences dans des solutions de PEO à différentes concentrations. Des mesures de la largeur relative des doigts  $\lambda$  en fonction de leur vitesse ont montré un élargissement des doigts : à vitesse élevée  $\lambda$  tend vers des valeurs plus élevées que la limite classique  $\lambda = 0.5$ . Les résultats suggèrent que les observations très différentes de l'amincissement des doigts observés dans les solutions de Xanthane peuvent être attribués aux effets élastiques présents dans les solutions de PEO mais absents dans les solutions de Xanthane.

Nous avons montré que la loi de Darcy newtonienne reste valable lors des expériences de digitation visqueuse dans les solutions de PEO, en tenant uniquement compte de la viscosité quasi-newtonienne de ces solutions. Nous pouvons ainsi exclure l'influence de la viscosité élongationnelle sur l'instabilité.

Bonn *et al.* [13] ont effectué une étude de bulles d'air de longueur finie se déplaçant dans un capillaire rempli avec des solutions de PEO. Ces auteurs observent un élargissement dramatique du film de liquide restant entre la bulle d'air et la paroi du capillaire, par rapport à la largeur du film observée sous des conditions identiques dans l'eau. L'étude de Bonn *et al.* [13] montre que cet élargissement est dû à une contrainte normale élevée se manifestant dans le film. Cette contrainte normale est induite par un cisaillement élevé du liquide entre la surface des bulles et la paroi. La présence d'un tel cisaillement est moins évident pour un doigt dans une cellule de Hele-Shaw, car l'arrière du doigt est immobile. Nous avons donc effectué une étude de bulles de taille finie dans cette cellule. Nous avons constaté la largeur relative en fonction de la vitesse est identique à celle des doigts. Ceci indique qu'on peut supposer un cisaillement identique dans le film de mouillage restant entre l'air et la paroi dans les deux cas. Cette constatation nous a mené à l'hypothèse que l'épaisseur du film pour un doigt en cellule de Hele-Shaw pouvait être également augmentée par la contrainte normale dans les solutions de PEO, et ainsi induire l'élargissement des doigts. Une étude interférométrique a cependant relevé que l'épaisseur du film dans les solutions de PEO reste inchangée par rapport à celle de l'eau.

Nous avons montré qu'il est probable que la contrainte normale exerce néanmoins une pression supplémentaire sur le doigt. Pour cela, nous avons modifié le paramètre de contrôle  $1/B$  afin de tenir compte de cette pression supplémentaire en remplaçant la tension de surface  $\sigma$  par  $\sigma^* = \sigma + N_1 (\dot{\gamma}) b/2$ , où  $b$  est l'épaisseur de la cellule. Les résultats pour  $\lambda$  en fonction de ce paramètre modifié  $1/B_{\text{corr}}$  se mettent à l'échelle avec la courbe universelle obtenue pour les fluides newtoniens, lorsque les fluides ne montrent pas d'effets

élastiques trop importants. Pour des effets élastiques plus importants on observe à  $1/B_{\text{corr}}$  élevé une déviation à cette courbe vers des doigts plus larges. Des efforts expérimentaux et théoriques sont encore nécessaires pour comprendre en détail cet élargissement.





# Conclusion

Au cours de cette thèse, nous avons effectué une étude de l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes. Nous avons mené une étude systématique de la relation entre les propriétés rhéologiques des fluides non-newtoniens et la formation de motifs en cellule de Hele-Shaw linéaire. Pour cela, nous avons utilisé des fluides modèles ne possédant chacun essentiellement qu'une seule propriété non-newtonienne, ce qui nous a permis d'étudier séparément l'effet sur l'instabilité de Saffman-Taylor de chacune de ces propriétés.

Une caractérisation rhéologique des fluides utilisés a montré que chacun de ces fluides possède, dans une certaine gamme de cisaillements, une propriété non-newtonienne dominante, les autres pouvant être négligées. Ces propriétés sont notamment une viscosité rhéofluidifiante, un seuil d'écoulement et des effets élastiques tels qu'une contrainte normale élevée, qui sont parmi les propriétés non-newtoniennes les plus courantes.

Nous avons montré que les solutions du polymère rigide Xanthane sont rhéofluidifiantes et que ce caractère rhéofluidifiant peut être modulé en faisant varier la concentration des solutions. On obtient ainsi un fluide faiblement rhéofluidifiant à faible concentration et un fluide fortement rhéofluidifiant à forte concentration et on peut fabriquer une solutions avec le caractère rhéofluidifiant souhaité. Un gel de polymères est caractérisé par un seuil d'écoulement qui doit être dépassé pour mettre le fluide en mouvement. Pour des contraintes supérieures à cette contrainte seuil, le gel se comporte comme un fluide fortement rhéofluidifiant. Les solutions du polymère flexible PEO montrent des effets élastiques, notamment des contraintes normales élevées et une viscosité élongationnelle élevée, mais pas ou peu d'effet rhéofluidifiant mesurable. Cette contrainte normale devient plus importante à mesure que la concentration en PEO augmente.

Après avoir caractérisé les propriétés non-newtoniennes des fluides, nous avons étudié l'effet de ces propriétés sur l'instabilité de Saffman-Taylor. Nous avons d'abord étudié l'instabilité de Saffman-Taylor dans les solutions rhéofluidifiantes de Xanthane. Nous avons déterminé les modifications nécessaires à apporter à la loi de Darcy, qui est une des équations de base permettant de décrire l'instabilité. Nous avons montré qu'il est suffisant

de remplacer la viscosité  $\eta$  par la viscosité non-newtonienne  $\eta(\dot{\gamma})$  fonction du cisaillement dans la loi de Darcy, pour adapter celle-ci aux fluides faiblement rhéofluidifiants. Pour les fluides fortement rhéofluidifiants, il est cependant nécessaire de modifier plus profondément cette loi.

Ensuite, nous avons étudié le mécanisme de sélection des doigts dans les fluides rhéofluidifiants. On observe un amincissement des doigts : la largeur relative des doigts  $\lambda$  peut descendre en dessous de la limite  $\lambda = 0.5$  observée pour les fluides newtoniens à vitesse élevée. Ces valeurs de  $\lambda$  deviennent de plus en plus petites au fur et à mesure que le caractère rhéofluidifiant des solutions augmente.

Nous avons modifié le paramètre de contrôle de l'instabilité  $1/B$  afin de tenir compte du caractère rhéofluidifiant des solutions en remplaçant  $\eta$  par la viscosité non-newtonienne  $\eta(\dot{\gamma})$ . Les résultats expérimentaux concernant la largeur relative  $\lambda$  des doigts obtenue dans les solutions de Xanthane ont ensuite été tracés en fonction de ce  $1/B$ . Ce faisant, on retrouve pour les fluides faiblement rhéofluidifiants la courbe maîtresse de McLean et Saffman [64] concernant les fluides newtoniens. Notons que c'est aussi dans cette limite qu'il est suffisant de remplacer  $\eta$  dans la loi de Darcy par  $\eta(\dot{\gamma})$ . Pour les fluides fortement rhéofluidifiants, pour lesquels la loi de Darcy doit être modifiée plus profondément, les résultats s'écartent de cette courbe classique et des doigts plus fins sont observés. On observe de plus, une stabilisation de la largeur relative des doigts  $\lambda$  sur un plateau à  $1/B$  élevé. En faisant varier la largeur de la cellule de Hele-Shaw pour une concentration particulière, nous avons montré que la largeur relative  $\lambda$  ne tend pas vers un plateau unique à vitesse élevée, comme observé pour les fluides newtoniens, mais que la valeur de ce plateau dépend de la largeur de la cellule.

Ceci rappelle des observations faites par Rabaud *et al.* [73] dans les fluides newtoniens où ces auteurs ont perturbé les doigts par la présence d'une anisotropie dans le système : ils ont ajouté une rayure sur les plaques de la cellule dans la direction de propagation du doigt. Cette rayure introduit une direction de croissance préférentielle selon l'axe de la cellule comparable à l'anisotropie longitudinale qui se crée dans le système rhéofluidifiant. Cette anisotropie est engendrée par une zone locale de faible viscosité devant la pointe du doigt, là où la vitesse dans le fluide est élevée et qui se forme par suite du caractère rhéofluidifiant des solutions. Rabaud *et al.* [73] ont montré que, dans leur étude, c'est le rayon de courbure  $\rho$  à la pointe des doigts qui est sélectionné en fonction du nombre capillaire  $Ca$ . Ceci a motivé une analyse analogue de ce rayon de courbure des doigts dans les solutions de Xanthane. Les résultats permettent de distinguer entre deux régimes : un régime faible vitesse où le rayon de courbure varie avec  $Ca$  et un régime vitesse élevée où le rayon de courbure sature sur une valeur constante. Dans le régime à faible vitesse, nous avons montré que le rayon de courbure rapporté à l'épaisseur de

la cellule  $\rho/b$  est proportionnel à  $1/\sqrt{Ca}$  avec un coefficient de proportionnalité  $\alpha$ . Ce coefficient est une mesure de l'ampleur de l'anisotropie dans le système et est, pour les solutions de Xanthane, une fonction du caractère rhéofluidifiant des solutions. On observe de plus, que seules les valeurs de  $\lambda$  provenant de ce régime basse vitesse, se placent pour une concentration donnée, sur une courbe maîtresse pour différentes géométries si elles sont tracées en fonction de  $1/B$ . Rabaud *et al.* [73] donnent une expression analytique pour l'allure de cette courbe  $\lambda(1/B)$  en fonction de  $\alpha$ . Ces courbes  $\lambda(1/B)$  tendent vers 0 pour des  $1/B$  larges. Comme nous avons déterminé expérimentalement la relation entre  $\alpha$  et le caractère rhéofluidifiant des solutions, il nous est maintenant possible de prédire la largeur des doigts en fonction de  $1/B$  à partir de mesures rhéologiques. Il est de plus maintenant possible de montrer que les mesures de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$ , qui se trouvent sur cette courbe maîtresse pour une concentration donnée, sont en bon accord avec les prédictions théoriques de Ben Amar et Corvera Poiré [5, 23].

La stabilisation de  $\lambda$  sur des plateaux à vitesse élevée résulte de la saturation du rayon de courbure dans le régime à vitesse élevée. Ces plateaux diffèrent de la courbe maîtresse pour une concentration donnée. La saturation de  $\rho$  dépend de la concentration des solutions et de la géométrie de la cellule et entraîne ainsi des valeurs de plateau pour  $\lambda$  dépendant des mêmes facteurs. Pour le moment, nous ne savons pas expliquer cette saturation. La contrainte normale, qui peut, même si elle est généralement faible dans les solutions de Xanthane, intervenir à cisaillement élevé pourrait être à l'origine de ces plateaux.

Les observations faites lors des expériences de digitation visqueuse dans le fluide rhéofluidifiant peuvent ainsi être replacées dans le cadre plus général des études de l'instabilité de Saffman-Taylor où le doigt est perturbé par la présence d'une anisotropie du système. Des doigts de largeur plus petite que la limite classique  $\lambda = 0.5$  ont été observés dans des systèmes tels que ceux où les surfaces de la cellule présentent une rayure selon l'axe de propagation du doigt [73, 25], ceux où un fil a été tendu le long de cet axe [73, 25, 99] et ceux dans lesquels une bulle d'air est placée devant le doigt [73, 25]. Des telles perturbations du doigt détruisent systématiquement et indépendamment de la nature exacte de cette perturbation, la limite classique de  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse. Si une perturbation introduit une direction de croissance préférentielle selon l'axe de la cellule, on observe la formation de doigts avec une largeur relative  $\lambda < 0.5$  qui tend vers zéro quand  $1/B$  tend vers l'infini. Des comportements similaires sont également retrouvés par les analyses théoriques où la perturbation anisotrope provient d'une tension de surface anisotrope [49, 79] ou du caractère rhéofluidifiant du fluide comme discuté ci-dessus [4, 5, 23].

Lors d'une étude de l'instabilité dans un fluide à seuil, nous avons observé deux régimes

différents : le régime basse vitesse où il y a formation de structures très ramifiées (régime de seuil) et le régime à vitesse élevée où on observe un seul doigt stable au milieu de la cellule (régime visqueux). On montre que dans le régime de seuil, la contrainte seuil est dépassée de très peu et joue donc un rôle important pour l'instabilité. Dans ce régime, on observe une largeur caractéristique des doigts indépendante de la vitesse. Nous avons montré que ce comportement, très différent de celui observé dans les fluides newtoniens est lié au fait que la contrainte seuil est indépendante de la vitesse, tandis que la contrainte visqueuse des fluides newtoniens en dépend. Les mesures de la largeur des doigts en fonction de la contrainte seuil et de l'épaisseur de la cellule sont en très bon accord avec les prédictions théoriques résultant d'une analyse de stabilité linéaire menée par Coussot [27]. Cette analyse de stabilité linéaire montre de plus que la largeur caractéristique du doigt pour un fluide à seuil reste, contrairement au cas newtonien, inférieure à  $\lambda = 1$  dans la limite de vitesse nulle. Ceci est en accord avec la formation de structures très ramifiées observées et ayant une largeur de doigts bien caractéristique dans le régime basse vitesse. Quand la vitesse des doigts augmente, on observe une transition vers le régime visqueux. Nous avons montré que, dans ce régime, la contrainte seuil est dominée par les contraintes visqueuses et le fluide montre les caractéristiques d'un fluide fortement rhéofluidifiant. Les résultats de digitation visqueuse obtenue dans le régime visqueux pour un fluide à seuil sont semblables aux résultats obtenus dans les fluides rhéofluidifiants : la largeur relative  $\lambda$  des doigts décroît avec leur vitesse et peut atteindre des valeurs nettement plus petites que la limite newtonienne de  $\lambda = 0.5$  à haute vitesse.

Nous avons étudié l'influence des effets élastiques, notamment des contraintes normales et une viscosité élongationnelle élevées, sur l'instabilité dans les solutions de PEO. Des mesures de la largeur relative des doigts  $\lambda$  en fonction de leur vitesse dans ces solutions ont montré un élargissement des doigts :  $\lambda$  tend, à vitesse élevée, vers des valeurs plus élevées que la limite classique  $\lambda = 0.5$ . Nous avons montré que ce résultat qui est l'opposé de l'amincissement des doigts observé dans les solutions de Xanthane, peut être attribué aux effets élastiques présents dans les solutions de PEO mais quasiment absents dans les solutions de Xanthane.

Nous avons montré que la loi de Darcy pour les fluides newtoniens reste valable lors des expériences de digitation visqueuse dans les solutions de PEO, dont la viscosité est quasiment newtonienne. Nous pouvons ainsi exclure l'influence de la viscosité élongationnelle sur l'instabilité.

Bonn *et al.* [13] ont effectué une étude de l'écoulement de solutions de PEO contenant des bulles d'air de longueur finie dans un capillaire. Ils observent un épaississement dramatique du film de liquide restant entre la bulle d'air et la paroi, en comparaison du cas où le fluide est de l'eau pure. L'étude de Bonn *et al.* [13] montre que cet élargissement est

dû à une contrainte normale élevée se manifestant dans ce film. Cette contrainte normale est induite par un cisaillement élevé du liquide entre la surface des bulles et la paroi. La présence d'un tel cisaillement étant moins évident pour un doigt dans une cellule de Hele-Shaw, l'arrière du doigt étant immobile, nous avons effectué une étude de l'écoulement du fluide contenant des bulles de taille finie dans cette cellule. L'expérience montre que la largeur relative des bulles en fonction de la vitesse est identique à celle des doigts, ce qui indique qu'on peut supposer un cisaillement identique dans le film de mouillage restant entre l'air et la plaque dans les deux cas. Ceci nous a mené à l'hypothèse que l'épaisseur de ce film pour un doigt en cellule de Hele-Shaw pourrait être également augmentée par la contrainte normale qui se développe dans les solutions de PEO et ainsi induire l'élargissement des doigts. Une étude interférométrique de cette épaisseur a cependant montré que l'épaisseur du film obtenu avec les solutions de PEO est très voisine de celle observée avec l'eau pure.

Nous avons montré que la contrainte normale exerce néanmoins une pression supplémentaire sur le doigt qui s'ajoute à la pression capillaire. Quand le paramètre de contrôle  $1/B$  est modifié de façon à tenir compte de cette pression supplémentaire les résultats de mesures de  $\lambda$  en fonction de ce paramètre modifié se placent sur la même courbe universelle que celle obtenue avec les fluides newtoniens, tant que les fluides ne montrent pas d'effets élastiques trop élevés. Pour des contraintes normales élevées on observe une déviation par rapport à cette courbe universelle ce qui conduit à  $1/B$  élevé à des doigts plus larges. Des efforts expérimentaux et théoriques sont encore nécessaires pour comprendre en détail cet élargissement.

En conclusion, nous avons montré que le paramètre de contrôle  $1/B$ , adapté à un fluide rhéofluidifiant, s'obtient en remplaçant la viscosité  $\eta$  des fluides newtoniens par la viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  du fluide rhéofluidifiant. La largeur relative des doigts  $\lambda$  rapportée à la largeur du canal pour les fluides faiblement rhéofluidifiants en fonction de ce paramètre modifié se place sur la courbe universelle obtenue pour les fluides newtoniens. Pour des fluides fortement rhéofluidifiants, les résultats s'écartent de cette courbe et on observe des doigts plus fins. Ces résultats sont dans une certaine gamme de  $1/B$  bien décrits par les théories de Ben Amar et Corvera Poiré [5, 23] concernant l'instabilité dans les fluides rhéofluidifiants et dépendent du caractère rhéofluidifiant des solutions. Il devient donc possible de remonter à la forme de la courbe  $\lambda(1/B)$  en connaissant le comportement rhéologique de la viscosité rhéofluidifiante d'un fluide. Une autre modification des contraintes visqueuses est étudiée avec un fluide à seuil. A très faible vitesse, où le seuil d'écoulement du fluide domine son comportement rhéologique, on observe des structures très ramifiées avec une largeur caractéristique de doigts. Cette largeur est, contrairement aux résultats obtenus avec les fluides newtoniens, indépendante de la vitesse. Elle est

cependant fonction de la contrainte seuil et peut être calculée à l'aide de l'analyse de stabilité linéaire des fluides à seuil de Coussot [27]. Un effet très différent est observé dans les fluides qui présentent des effets élastiques. La contrainte normale  $N_1(\dot{\gamma})$  exerce sur le doigt une pression supplémentaire dans la direction de l'épaisseur de la cellule  $b$ . On peut tenir compte de cette pression supplémentaire en remplaçant dans le paramètre de contrôle la tension de surface  $\sigma$  par  $\sigma^* = \sigma + N_1(\dot{\gamma})b/2$ . Les mesures de la largeur relative des doigts  $\lambda$  représentées en fonction de ce paramètre de contrôle modifié coïncident, de nouveau, avec la courbe universelle obtenue pour les fluides newtoniens, tant que les effets élastiques ne sont pas trop grands. Pour des effets élastiques forts, les résultats s'écartent de cette courbe universelle, ce qui conduit à des doigts plus larges pour  $1/B$  élevé.

Nous pensons que la connaissance des effets de chacune de ces propriétés non-newtoniennes considérée séparément, sur l'instabilité de Saffman Taylor, constitue une base pour l'étude de cette instabilité dans les fluides complexes. Nous espérons que les résultats présentés ici permettront aussi de comprendre l'instabilité dans des fluides encore plus complexes présentant simultanément plusieurs propriétés non-newtoniennes. Ceci pourrait permettre d'expliquer une partie des motifs très variés déjà observés dans ces fluides.

# Annexe A

## Motifs observés dans de la mousse

Dans cet appendice nous nous intéressons à l'instabilité de Saffman-Taylor dans une mousse. Contrairement aux résultats présentés lors de l'étude du fluide à seuil (paragraphe 5.3.6), nous travaillons ici dans une géométrie circulaire. L'objet de cette annexe est de présenter des résultats préliminaires d'une étude expérimentale de ce problème. Nous nous contenterons ici d'une description plutôt qualitative des morphologies observées. Ces résultats se trouvent aussi dans Lindner *et al.* [61].

### A.1 Le montage expérimental

Le montage expérimental consiste en une cellule de Hele-Shaw radiale (voir Fig. A.1).

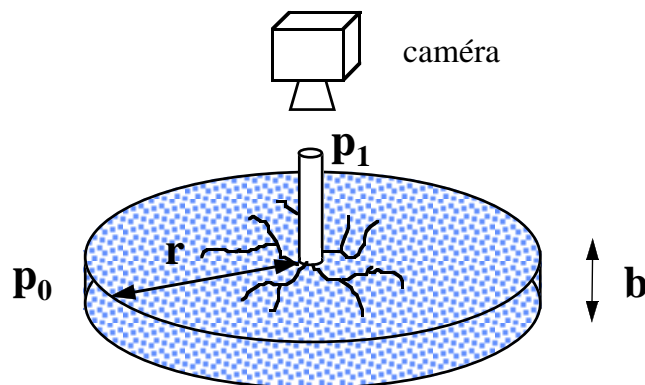


FIG. A.1: *Montage expérimental.* Une cellule de Hele-Shaw radiale avec une épaisseur  $b = 0.48$  mm et un rayon  $R = 24$  cm. La différence de pression entre l'entrée et la sortie de la cellule est  $\Delta p = p_1 - p_0$ .



Le rayon  $R$  de la cellule est de  $24\text{cm}$  et l'épaisseur  $b$  est  $0.48\text{mm}$ . La cellule est remplie avec une mousse à raser commerciale "Gillette Foamy regular", qui est typiquement composée de 90% de gaz. Comme le montre la figure A.2, les bulles ont une distribution de taille assez large, centrée autour d'un diamètre de l'ordre de  $30\mu\text{m}$ . Nous injectons au centre de la cellule soit de l'eau soit de l'air. Des mesures rhéologiques (paragraphe 5.3) ont montré

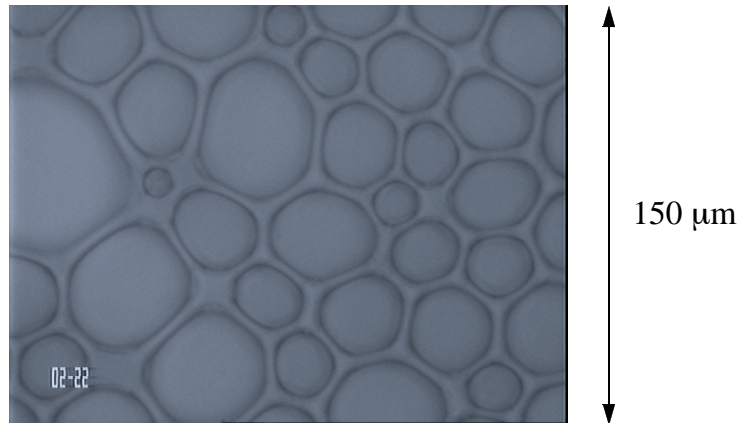


FIG. A.2: Détail d'une mousse observé au microscope, quelques secondes après sa création. On peut remarquer que les bulles forment un réseau polygonal. L'épaisseur est  $b = 0.4\text{ mm}$  et l'échelle verticale équivaut à  $150\mu\text{ m}$ .

que la mousse est un fluide à seuil, si la mousse ne glisse pas au niveau des parois. Dans ce cas, la mousse se comporte comme un fluide élastique en dessous de la contrainte seuil et comme un fluide visqueux au dessus de cette contrainte. De plus, au dessus de la contrainte seuil, la viscosité de la mousse est fortement rhéofluidifiante. Lorsque la mousse glisse au niveau des parois cette propriété de fluide à seuil est masquée et on observe uniquement le comportement d'un fluide visqueux.

Dans une première partie, nous décrirons les expériences réalisées avec de l'air, puis celles réalisées avec de l'eau dans une seconde partie.

## A.2 Injection d'air dans la mousse

Quand on injecte de l'air au milieu de la cellule, des doigts larges se développent (voir Figure A.3). A cause de la structure granulaire de la mousse, la surface des doigts n'est pas parfaitement lisse. Mais, malgré cela, la morphologie obtenue ressemble beaucoup à celle des digitations de Saffman-Taylor, observés par Paterson [69] dans cette géométrie avec des fluides classiques.

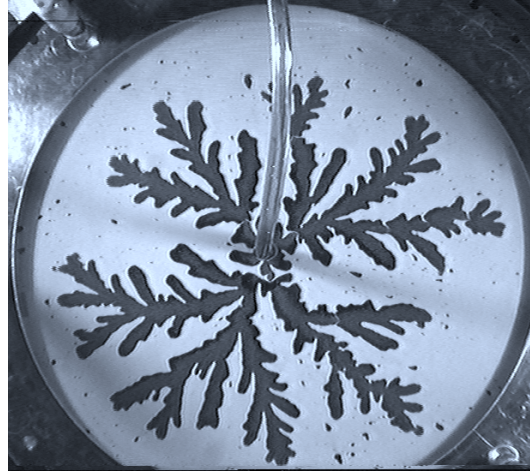


FIG. A.3: *Doigts lents créés en injectant d'air dans la mousse à une différence de pression  $\Delta P \approx 0.16$  bar.*

Une étude similaire a été effectuée par Park et Durian [68]. Nous avons décrit cette étude dans le chapitre 3. Ils trouvent une dépendance de la largeur des doigts avec le rapport entre l'épaisseur de la cellule et la taille des bulles. Ils focalisent leur attention sur deux formes différentes de morphologie. Ils distinguent, de manière plus qualitative que quantitative, des doigts bruités et des doigts plus lisses, et attribuent cette évolution à la transition entre un régime plutôt élastique et un régime visqueux. Ils définissent un seuil de cisaillement  $\dot{\gamma}$  caractérisant cette transition.

Lors de nos expériences, nous n'avons pas observé une telle transition. A vitesse élevée, nous avons cependant vue une transition vers des doigts très fins (Fig. A.4 a).

Cette transition rappelle les transitions vers des doigts ressemblant à des fractures observés par Van Damme *et al.* [90, 89, 91, 54] dans des argiles, et Zhao *et al.* [97] dans des solutions de polymères associatives (chapitre 3). Dans notre cas, la pointe des doigts très fins semble cependant s'élargir de nouveau après la transition (Fig. A.4 b). Un tel élargissement n'est pas observé dans les expériences citées ci dessus, où la pointe des doigts reste pointue.

### A.3 Injection d'eau dans la mousse

Nous allons maintenant décrire les comportements très différents observés avec l'injection d'eau.

Quand on injecte de l'eau au milieu de la cellule, la situation change fondamentalement. L'eau est miscible avec le liquide savonneux qui forme les parois des bulles. On

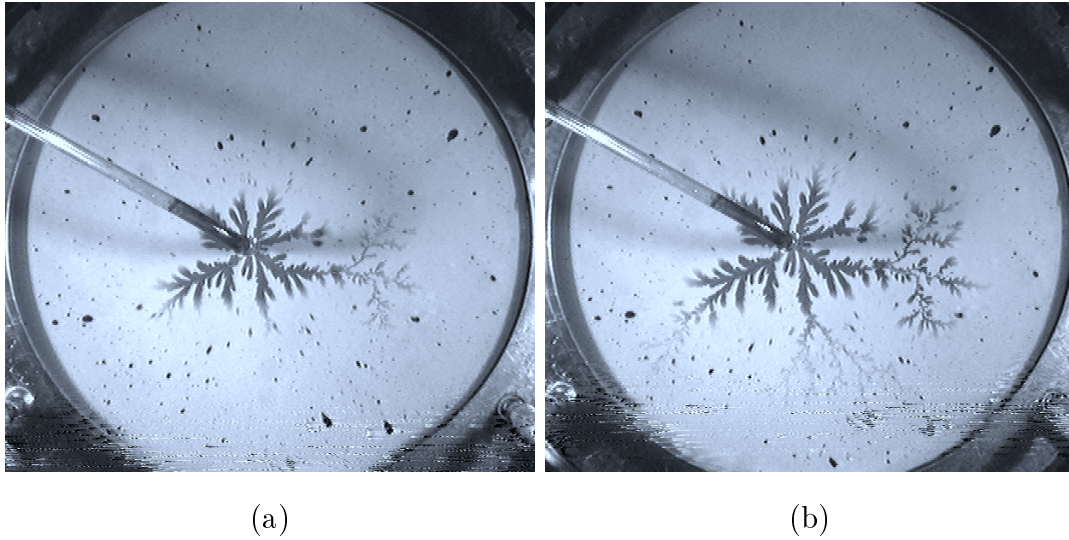


FIG. A.4: Série de doigts créés en injectant de l'air dans la mousse.  $\Delta p \sim 0.25$  bar. On observe une transition vers des doigts fins.

travaille donc dans un système sans tension de surface. Pour de tels systèmes, il est connu [70] que des doigts fins apparaissent dont la largeur est déterminée par l'épaisseur de la cellule. Dans notre cas, on observe d'abord (comme ci-dessus) la formation d'une structure arborescente (figure A.5 a et b), mais dans laquelle les branches sont beaucoup plus fines (à l'échelle de l'épaisseur de la cellule). Lorsque le motif est suffisamment grand, on observe des reconnections : l'extrémité de certaines branches rejoint d'autres branches. On a donc formation de "boucles" (figure A.5 c et d). Cette morphologie est très différente de celle des digitations de Saffman-Taylor avec des fluides classiques. Dans ce dernier cas, une structure de branches hiérarchisées est créée, mais, à cause du caractère Laplacien du champ (scalaire) de pression qui détermine la croissance des doigts, deux branches ne se rencontrent jamais. La forme des structures observées ressemble plus à celle des phénomènes d'angiogénèse des systèmes biologiques. On observe de plus un phénomène d'érosion : à la base des plus grandes branches, on voit les bulles entraînées par le courant d'eau. Ce phénomène devient évident quand quelques doigts d'eau arrivent aux bords de la cellule et forment ainsi des canaux qui lient le centre de la cellule aux bords de celle-ci. Ces canaux s'élargissent au cours du temps (Fig. A.5 e). Sur la figure A.5 f, on voit la cellule un instant après l'arrêt de l'écoulement de l'eau. Les propriétés élastiques de la mousse, font que les doigts se referment, ce qui entraîne la disparition du motif.

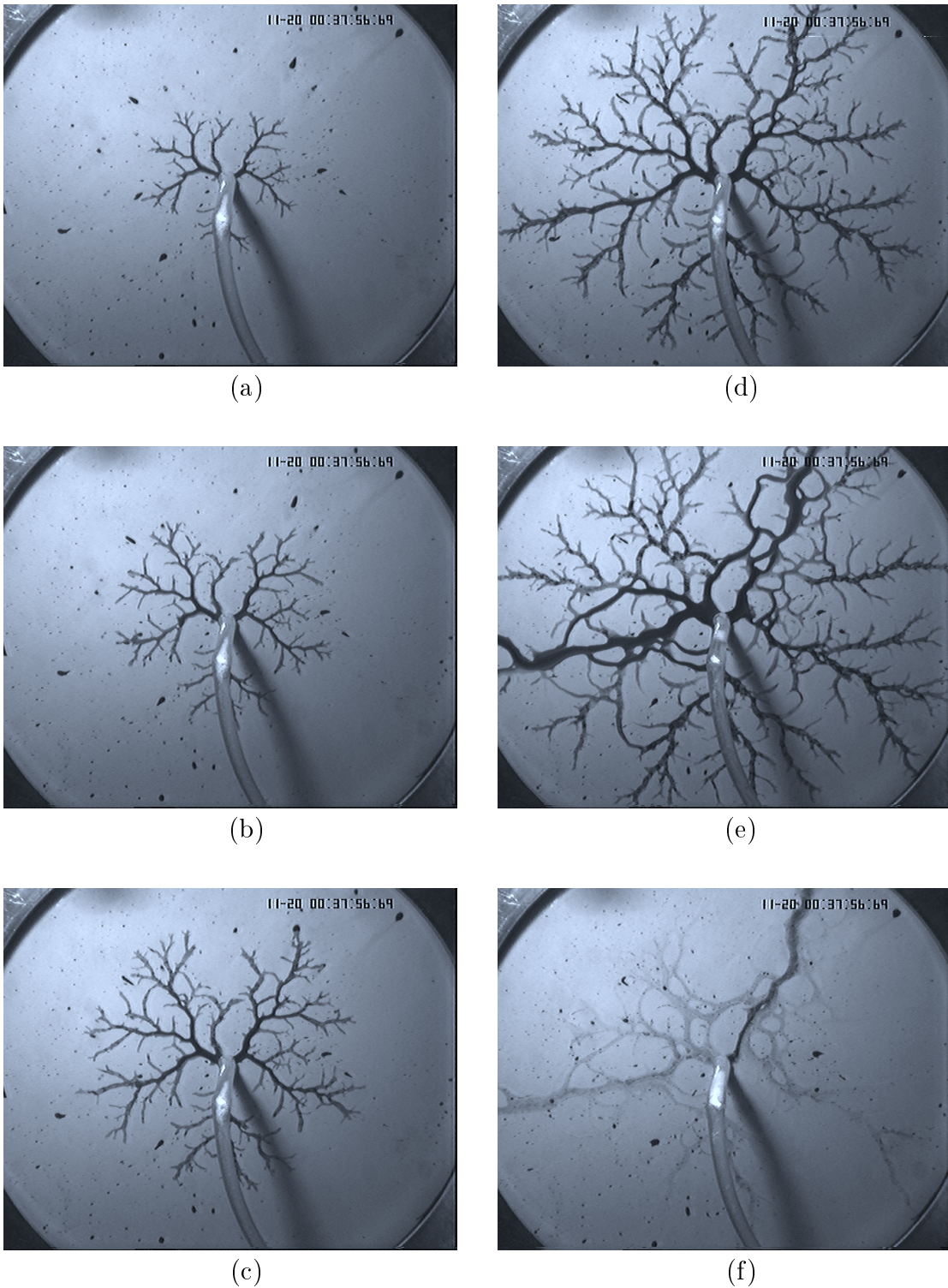


FIG. A.5: Série de doigts créés par injection d'eau dans la mousse.  $\Delta p = 0.11$  bar. )a et b) On observe la formation d'une structure arborescente. c) et d) Lorsque le motif est suffisamment grand, on observe des reconnections : on a donc formation de "boucles". e) On constate un phénomène d'érosion. f) La cellule un instant après l'arrêt de l'écoulement de l'eau.

Le raisonnement suivant pourrait expliquer le mécanisme de propagation des doigts. Comme l'eau et la mousse sont miscibles près de la frontière eau-mousse, la concentration du gaz diminue, ce qui donne une mousse plutôt liquide dans la proximité de la pointe. Les bulles ont alors un mouvement assez important et il est possible à la pointe d'avancer

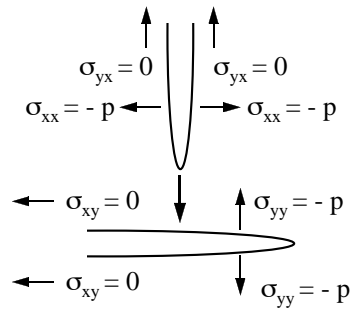


FIG. A.6: Diagramme des contraintes de deux fractures. Les conditions aux bords imposent  $\sigma_{xy} = 0$  dans la fracture horizontale, et  $\sigma_{yx} = 0$  dans la verticale. Le mode d'ouverture pure est caractérisé par la valeur la plus petite possible de la composante  $\sigma_{xy} = \sigma_{yx}$ . Il est naturel que la fracture verticale pousse vers la frontière de l'horizontale car  $\sigma_{xy}$  devient nulle à cet endroit.

dans la mousse. Comme nous l'avons expliqué auparavant, la mousse se comporte comme un fluide à seuil si l'on peut négliger le glissement de celle-ci au niveau des parois. De tels fluides se comportent, pour des contraintes inférieures à la contrainte seuil, comme des solides élastiques. Loin du doigt, la mousse pourrait donc être dans un état solide élastique ; la pression est donc un tenseur, et les doigts suivent les lois de mouvement d'une fracture fragile. D'après un argument de Adda-Bedia [2], comme il s'agit de "fractures" lentes, elles bougent suivant le "principe de symétrie locale" : le mouvement d'une fracture est tel qu'elle se trouve dans un mode d'ouverture pure. Ceci est tout à fait possible, comme le montre la figure A.6. Une manière intuitive de voir ça est la suivante. Le passage des digitations "primaires" (les doigts initiaux) relâche les contraintes  $\sigma$  selon l'axe  $y$  mais pas selon l'axe  $x$ . Une fracture perpendiculaire relâche les contraintes selon  $x$  et peut donc venir rencontrer la fracture initiale.

# Bibliographie

- [1] A.W. Adamson, *Physical Chemistry of surfaces*, John Wiley & Sons, New York
- [2] M. Adda-Bedia, communication privée
- [3] H.A. Barnes, J.F. Hutton and K. Walters, *An introduction to rheology*, Elsevier, Amsterdam 1989
- [4] M. Ben Amar, Viscous fingering : a singularity in Laplacian growth models, *Phys. Rev. E*, **51** (1995) 3819
- [5] M. Ben Amar et E. Corvera Poiré, Pushing a non-Newtonian fluid in a hele-Shaw cell : From fingers to needles, *Phys. Fluids*, **11** (1999) 1757
- [6] M. Ben Amar, communication privée
- [7] B.J. Berne et R. Peccora, *Dynamic light scattering*, Wiley and Sons, Inc. 1976
- [8] D. Bensimon, L.P. Kadanoff, S. Liang, B.I. Shraiman and C. Tang, Viscous flows in two dimensions, *Rev. Mod. Phys.*, **58** (1986) 977
- [9] R.B. Bird, R.C. Armstrong et O. Hassager, *Dynamics of polymeric liquids* tome 1 et 2, J. Wiley and Sons, New York 1987
- [10] R.B. Bird, *Chem. Eng. Commun.* **16** (1982) 175
- [11] D. Bonn, Y. Couder, P.H.J. van Damme et S. Douady, From small scales to large scales in three-dimensional turbulence : the effect of diluted polymers, *Phys. Rev. E*, **47** (1993) 28
- [12] D. Bonn, H. Kellay, M. Ben Amar et J. Meunier, Viscous finger widening with surfactants and polymeres, *Phys. Rev. Lett.*, **75** (1995) 2132
- [13] D. Bonn et J. Meunier, Viscoelastic Free-Boundary Problems : Non-Newtonian Viscosity vs Normal Stress Effects, *Phys. Rev. Lett.*, **79** (1997) 2662
- [14] D. Bonn, H. Kellay et J. Meunier, Viscous fingering and related instabilities in complex fluides, *Philosophical Magazine B*, **78** (1998) 131
- [15] D. Bonn, H. Kellay, M. Bräunlich, M. Ben Amar et J. Meunier, Viscous fingering in complex fluids, *Physica A*, **220** (1995) 60

- [16] F.P. Bretherton, The motion of long bubbles in tubes, *J. Fluid Mech.*, **10** (1961) 166
- [17] A. Buka et P. Palffy-Muhoray, Morphological phase transitions in viscous fingering patterns in the liquid crystal 8CB, *J. Phys. France*, **49** (1988) 1319
- [18] A. Buka, J. Kertez et T. Vicsek, Transition of viscous fingering patterns in nematic liquid crystals, *Nature*, **323** (1986) 424
- [19] G. Chauveteau, Rodlike polymer solution flow through fine pores : influence of pore size on rheological behaviour, *J. Rheol.* (1982) 111
- [20] R.L. Chuoke, P. van Meurs and V. Van der Pol, *Pet. Trans. AIME* **216**, 188 (1959)
- [21] R.C. Combescot, T. Dombre, V. Hakim et Y. Pomeau, Shape selection of Saffman-Taylor fingers, *Phys. Rev. Lett.*, **56** (1986) 2036
- [22] Corvera Poiré et Ben Amar, communication privée
- [23] E. Corvera Poiré and M. Ben Amar, Finger behavior of a shear thinning fluid in a Hele-Shaw cell, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2048 (1998)
- [24] Y. Couder, Growth Patterns : from stable curved fronts to fractal structures, *Chaos, Order and Patterns*, Ed. R. Artuso et al. (Plenum press, New York, 1991)
- [25] Y. Couder, N. Gerard et M. Rabaud, Narrow fingers in the Saffman-Taylor instability, *Phys. Rev. A*, **34** (1986) 5175
- [26] Y. Couder, communication privée
- [27] P. Coussot, The Saffman-Taylor instability in yield stress fluids, *J. Fluid Mech.*, **380** (1999) 63
- [28] P. Coussot and C. Ancey, *Rheophysics of pastes and suspensions (in French)* (EDP Sciences, Paris 1999)
- [29] P. Coussot, *Mudflow Rheology and Dynamics*, Balkema, Rotterdam 1997
- [30] E. Daccord, J. Nittman et H.E. Stanley, Radial viscous fingering and Diffusion-Limited Aggregation : Fractal Dimension and Growth Siter, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, (1986) 336
- [31] P.G. de Gennes, Time Effects in Viscoelastic Fingering, *Europhys. Lett.*, **3** (1987) 195
- [32] P.S. Doyle, E.S. Shaqfeh, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, **76** (1998) 43, P.S. Doyle, E.S. Shaqfeh, G.H. McKinley, S.H. Spiegelberg, *J. Non-Newt. Fluid. Mech.*, **76** (1998) 79
- [33] R. J. Fields et M. F. Ashby, Fingerlike crack growth in solids and liquids, *Phil. Mag.*, **33** (1976) 33

- [34] T.G. Fox et P.J. Flory, Intrinsic viscosity-temperature relationships for polyisobutylene in various solvents, *J. American Chemical Society*, **73** (1951) 1909
- [35] H. Fujita, *Polymer solutions*, Elsevier, New York, 1990
- [36] G.G. Fuller, C.A. Cathey, B. Hubbard et B.E. Zebrowski, Extensional Viscosity Measurements for Low-Viscosity Fluids, *J. Rheol.*, **31** (1987) 235
- [37] O. Greffier, A. Al Kawaji, J. Rouch et H. Kellay, Observation of a Finite-Time Singularity in Needle Propagation in Hele-Shaw Cells, *Phys. Rev. Lett.*, **81** (1998) 3860
- [38] A. Groisman et V. Steinberg, Mechanism of elastic instability in Couette flow of polymer solutions : Experiment, *Phys. Fluids*, **10** (1998) 2452
- [39] E. Guyon, J.-P. Hulin et L. Petit, *Hydrodynamique physique*, ED. Inter Editions / Editions du CNRS, Paris 1994
- [40] A. Gyr et H. W. Bewersdorff, *Drag reduction of Turbulent Flow by Additives* Kluwer, Dordrecht 1995
- [41] E. Hecht, *Optik*, Edison Wesley (1989)
- [42] N. Hudson et T. Jones, *J. Non-Newt. Fluid. Mech.*, The A1 project-an overview, **46** (1993) 69
- [43] J. Ignés-Mullol, H. Zhao et J.V. Maher, Velocity fluctuations of fracturelike disruptions of associating polymer solutions, *Phys. Rev. E*, **51** (1995) 1338
- [44] H.S. Hele-Shaw, The flow of water, *Nature*, **58** (1898) 34
- [45] G.M. Homsy, Viscous fingering in a porous media, *A. Rev. Fluid Mech.*, **19** (1987) 271
- [46] D.C. Hong and J.S. Langer, Analytic theory of the selection mechanism in the Saffman-Taylor problem, *Phys. Rev. Lett.*, **56** (1986) 2032
- [47] D.C. Hong et J.S. Langer, Pattern selection and tip perturbation in the Saffman-Taylor problem, *Phys. Rev. A*, **36** (1987) 2325
- [48] M. Kawaguchi, A. Shibata, K. Shimoto et T. Kato, Effect of geometry and anisotropy of a Hele-Shaw cell on viscous fingering of polymer solutions, *Phys. Rev. E*, **58** (1998) 785
- [49] D. A. Kessler et H. Levine, Stability of finger patterns in Hele-Shaw cells, *Phys. Rev. A*, **32** (1985) 1930
- [50] L. Kondic, M. J. Shelley and P. Palffy-Muhoray, Non-Newtonian Hele-Shaw flow and the Saffman-Taylor Instability, *Phys. Rev. Lett.*, **80** (1998) 1433
- [51] L Kondic, P. Palffy-Muhoray and M. J. Shelley, Models of non-Newtonian Hele-Shaw flow, *Phys. Rev. E*, **54** (1996) R4536



- [52] L.D. Landau et E.M. Lifschitz, *Hydrodynamik*, Verlag Harri Deutsch, Berlin 1991
- [53] R.G. Larson, *Constitutive equations for Polymer melts and solutions*, Butterworth 1988
- [54] E. Lemaire, P. Levitz, G. Daccord et H. Van Damme, From Viscous Fingering to Viscoelastic Fracturing in Colloidal Fluids, *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 2009
- [55] Levich, *Physico-Chemical Hydrodynamics*
- [56] A. Lindner, D. Bonn and J. Meunier, Viscous fingering in a shear thinning fluid, *Phys. Fluids*, **12** (2000) 256, notez qu'il y a une erreur d'impression dans l'équation 1
- [57] A. Lindner, P. Coussot et D. Bonn, Viscous fingering in a yield stress fluid, *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 314
- [58] A. Lindner, J. Vermant et D. Bonn, Elongational viscosity of polymer solutions, soumis à *Phys. Rev. E*
- [59] A. Lindner, D. Bonn and J. Meunier, Viscous fingering in complex fluids, *J. Phys : Condensed Matter*, **12** (2000) A477
- [60] A. Lindner, D. Bonn, M. Ben Amar, J. Meunier and H. Kellay, Controlling Viscous Fingering, *Europhysics news*, May/June (1999) 77
- [61] A. Lindner, S. Rica et Y. Couder, Ed. Paris Onze, Rencontre du NON-Lineaire Paris 1999, 68
- [62] C. Macosko, *Rheologie : Principles, measurements and Applications*, (Wiley, New York, 1994)
- [63] K.V. McCloud et J.V. Maher, Experimental perturbations to Saffman-Taylor flow, *Phys. Rep.*, **206** (1995) 139
- [64] J. W. McLean and P. G. Saffman, The effect of surface tension on the shape of fingers in a Hele-Shaw cell, *J. Fluid Mech.*, **102** (1981) 455
- [65] J. Nittmann, G. Daccord and H.E. Stanley, Fractal growth of viscous fingers : quantitative characterization of a fluid phenomena, *Nature* **314**, 141 (1985)
- [66] C.W. Park et G.M. Homsy, The instability of long fingers in Hele-Shaw flows, *Phys. Fluids* **28** 1583 (1986)
- [67] C.W. Park and G.M. Homsy, Two phase displacement in Hele-Shaw cells : theory, *J. Fluid Mech.*, **139** (1984) 291
- [68] S.S. Park and D.J. Durian, Viscous and Elastic Fingering Instabilities in Foam, *Phys. Rev. Lett.*, **72** (1994) 3347
- [69] L. Paterson, Radial fingering in a Hele-Shaw cell, *J. Fluid Mech.*, **113** (1981) 513

- [70] L. Paterson, Fingering with miscible fluids in a Hele-Shaw cell, *Phys. Fluids*, **28** (1985) 26
- [71] P. Pelcé, *Dynamics of curved fronts*, Academic press, 1988
- [72] Polymer Handbook, 3rd edition, Section VII, 41
- [73] M. Rabaud, Y. Couder et N. Gerard, Dynamics and stability of anomalous Saffman-Taylor fingers, *Phys. Rev. A*, **37** (1988) 935
- [74] J. S. Ro and G. M. Homsy, Viscoelastic free surface flows : thin film hydrodynamics of Hele-Shaw and dip coating flows, *J. Non-Newtonian Fluid. Mech.*, **220** (1990) 413
- [75] J.E. Sader, D.Y.C. Chan and B.D. Hughes, Non-Newtonian effects on immiscible viscous fingering in a radial Hele-Shaw cell, *Phys. Rev. E*, **49** (1994) 420
- [76] P. G. Saffman and G. I. Taylor, The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid, *Proc. R. Soc. A*, **245** (1958) 312
- [77] P. G. Saffman, Viscous fingering in Hele-Shaw cells, *J. Fluid Mech.*, **173** (1986) 73
- [78] H. A. Scheraga, Non-Newtonian viscosity of solutions of ellipsoidal particles, *J. Chem. Phys.*, **23** (1955) 1526
- [79] B. E. Shaw, Universality in selection with local perturbations in the Saffman-Taylor problem, *Phys. Rev. A*, **40** (1980) 5875
- [80] B.I. Shraiman, Velocity selection and the Saffman Taylor problem, *Phys. Rev. Lett.*, **56** (1986) 2028
- [81] K.R. Shull, C.M. Flanigan et A.J. Crosby, Fingering Instabilities of Confined Elastic Layers in Tension, *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 3057
- [82] R. Simha, L.J. Zakin, Compression of flexible chain molecules in solution, *J. Chemical Physics*, **33**(6), (1960) 1791
- [83] D.E. Smith, X.Z. Wu, A. Libchaber, E. Moses and T. Witten, Viscous finger narrowing at the coil-stretch transition in a dilute polymer solution, *Phys. Rev. A*, **45** (1992) R2165
- [84] T. Sridhar, *Perspectives on rheology for the 21<sup>st</sup> century*, Proceedings of the Korea Rheology conference 1999, (Korean Society of Rheology, Korea, 1999)
- [85] F. T. Trouton, *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **77** (1906) 426
- [86] P. Tabeling, G. Zocchi et A. Libchaber, An experimental study of the Saffman-Taylor instability, *J. Fluid Mech*, **177** (1987) 67
- [87] P. Tabeling et A. Libchaber, Film draining and the Saffman-Taylor problem, *Phys. Rev. A*, **33** (1986) 794

- [88] R.I. Tanner, *Engineering Rheology*, Oxford Science Publications 1992
- [89] H. Van Damme, E. Lemaire, O.M. Abdelhaye, A. Mourchid, P. Levitz, Pattern Formation in Particulate Complex Fluides : A Guided Tour, *Non-linearity and breakdown in Soft Condensed Matter*, Ed. K.K. Bardan et al., Lecture Notes in Physics vol. 437, (Springer 1994)
- [90] H. Van Damme, Flow and Interfacial Instabilities in Newtonian and Colloidal Fluids (or The Birth, Life and Death of a Fractal), *The fractal Approach to Heterogeneous Chemistry*, Ed. D. Avnir, John Wiley & Sons Ltd. 1989
- [91] H. Van Damme et E. Lemaire, From Flow to Fracture and Fragmentation in Colloidal Media, 1 : Non-Newtonian Fingering and Visco-Elastic Fracturing, *Disorder and Fracture*, Ed. J.C. Charmet et al. Plenum Press, New York, 1990, p. 83
- [92] H. Van Damme, E. Alsac, C. Laroche and L. Gatineau, On the Respective Roles of Low Surface Tension and non-Newtonian Rheological Properties in Fractal Fingering, *Europhys. Lett.* **5** (1988) 25
- [93] D.H. Vlad, J. Ignes-Mullol and J.V. Maher, Velocity-jump instabilities in Hele-Shaw flow of associating polymer solutions, *Phys. Rev. E*, **60** (1996) 4423
- [94] D.H. Vlad et J.V. Maher, Tip-splitting instabilities in the channel flow of constant viscosity elastic fluids, *Phys. Rev. E.*, **61** (2000) 5439
- [95] H.R. Warner, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **11** (1972) 379
- [96] S. D. R. Wilson, The Taylor Saffman problem for a non-Newtonian liquid, *J. Fluid Mech.*, **220** (1990) 413
- [97] H. Zhao and J.V. Maher, Associating-polymer effects in a Hele-Shaw experiment, *Phys. Rev. E*, **47** (1993) 4278
- [98] B.H. Zimm, Dynamics of polymer molecules in dilute solutions : viscoelasticity, flow birefringence, *J. Chem. Phys.* **24** (1956) 269
- [99] G. Zocchi, B.E. Shaw, A. Libchaber and L.P. Kadanoff, Finger narrowing under local perturbations in the Saffman-Taylor instability, *Phys. Rev. A*, **36** (1987) 1894