

Écoulement tri-dimensionnel de micelles géantes Benoit Lasne

▶ To cite this version:

Benoit Lasne. Écoulement tri-dimensionnel de micelles géantes. Dynamique des Fluides [physics.fludyn]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2010. Français. NNT: 2010PA077218. tel-00530900

HAL Id: tel-00530900 https://theses.hal.science/tel-00530900

Submitted on 30 Oct 2010

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.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License





UNIVERSITÉ DE PARIS VII - U.F.R. DE PHYSIQUE

LABORATOIRE MATIÈRE ET SYSTÈMES COMPLEXES

THÈSE DE DOCTORAT

École doctorale : CONSTITUANTS ÉLÉMENTAIRES ET SYSTÈMES COMPLEXES

Spécialité : CHAMPS, PARTICULES, MATIÈRE

présentée par

Benoît Lasne

le 22 Septembre 2010 pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS VII

Sujet

Écoulement tri-dimensionnel de micelles géantes

Jury composé de :

Ovidiu Radulescu Sandra Lerouge Jean-Marc Di Meglio Annie Colin Sébastien Manneville président du jury directrice de thèse co-directeur rapporteur rapporteur ii

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Sandra et Jean-Marc pour m'avoir accueilli dans le laboratoire MSC et pour avoir encadré cette thèse de façon très complémentaire tout en me laissant la liberté d'ouvrir mes propres directions de recherche pendant ces deux années particulièrement intenses, stressantes et difficiles.

Merci à Eric Huguet, ancien professeur et ami, pour ces conseils, sa gentillesse et son soutien sans faille.

Je tiens à remercier Laurent Limat et Jean-François Berret pour leurs conseils et nos discussions si passionnantes, un grand merci à vous deux.

Un grand merci à Jean-Louis Counord et Laurent Réa pour la cellule expérimentale et les géométries. Vous avez été très disponibles et réactifs pour ajuster mes problèmes de mécanique ce qui m'a permis de ne pas perdre de temps!

Je tiens à remercier tous ceux et celles qui m'ont apportés leur soutien moral, leur aide durant ma thèse. Un grand merci à Démosthène Mitrossilis (a.k.a. malaka;D), Gérald Gurtner (a.k.a. Gégé) monstrueux au *blobby volley*, Camilla Barbetta (a.k.a. Camila) pour m'avoir appris un peu de Brésilien, Kristina van Duijvendijk (a.k.a. Krikrina) pour mon initiation au bio végétalien réussie, même si je n'ai pas pris la carte de membre de la secte, Damien (a.k.a. Robert) pour son humour du Larzac, Waleed Mouhali (a.k.a. instability man) pour sa constante bonne humeure et son humour, Méhdi Banaha (a.k.a. Dr Banana), Franck Raynaud (a.k.a. franckyky), Guillaume Frasca (a.k.a. guigui), Mickael Levy (a.k.a. bisounours man) pour sa gentillesse, Julien Moukhtar (a.k.a. The julien) pour son aide géniale, Giuseppe Pucci (a.k.a. Geppeto), Antonin Eddi (a.k.a. Toni), et tant d'autres!!

Un grand merci à ma maman, mon papa, mon frère, Jérôme, et mes amis pour leur soutien si précieux. Enfin, merci à ma petite chocolatine qui m'a soutenu dans ces moments si difficiles. Sans vous, je n'aurais jamais pu arriver au bout... A ma famille, mes amis.

Voir un univers dans un grain de sable et un paradis dans une fleur sauvage. Tenir l'infini dans la paume de la main et l'éternité dans une heure. William Blake

Table des matières

11

Introduction

| Ι | Généralités : fluides complexes et rhéologie | | | | | | |
|---|--|--|--|--------------------------------|--|----|--|
| | 1 | Introduction à la rhéologie et aux fluides complexes | | | | | |
| | | 1.1 | Définitions | | | 15 | |
| | | 1.2 | Fluides complexes | | | 16 | |
| | | | 1.2.1 | Viscoéla | sticité linéaire | 16 | |
| | | | 1.2.2 | Rhéogra | mmes | 17 | |
| | | | 1.2.3 | Exemple | es de fluides complexes et leurs applications | 18 | |
| | | 1.3 | Micelles géantes | | 18 | | |
| | | | 1.3.1 | Morphol | logie des agrégats de molécules de tensio-actifs | 18 | |
| | | | 1.3.2 | Modèle | de Cates | 19 | |
| | | | 1.3.3 | Compor | tement sous écoulement : instabilité en bandes de cisaillement | 20 | |
| | | | 1.3.4 | Historique de la problématique | | 22 | |
| | | 1.4 | Instabilités sous écoulement | | 27 | | |
| | | | 1.4.1 | Instabili | tés d'origine inertielle | 27 | |
| | | | | 1.4.1.1 | Instabilité de Taylor-Couette | 27 | |
| | | | | 1.4.1.2 | Instabilité de Kelvin-Helmholtz | 30 | |
| | | | 1.4.2 | Instabili | tés à bas <i>Reynolds</i> | 30 | |
| | | | | 1.4.2.1 | Instabilité entre deux films liquides cisaillés | 30 | |
| | | | | 1.4.2.2 | Instabilité élastique | 31 | |
| | 2 | $\mathbf{Sys}^{\mathbf{r}}$ | Système expérimental et caractéristiques des fluides étudiés | | | | |
| | | 2.1 | Rhéo-optique | | | 35 | |
| | | | 2.1.1 | Cellule o | le Couette | 35 | |
| | | | 2.1.2 | Cône-pla | an | 38 | |
| | | 2.2 | Carac | térisation | des systèmes étudiés | 38 | |
| | | | 2.2.1 | Les écha | ntillons | 38 | |

| 2.2.2 | Rhéologie linéaire | 39 |
|-------|------------------------|----|
| 2.2.3 | Rhéologie non-linéaire | 41 |

IIÉtude expérimentale de la stabilité d'écoulements de Taylor-Couettede solutions de micelles géantes47

| 3 | Dés | stabilisation de l'interface et écoulement tri-dimensionnel 4 | | | | |
|---|-----|---|---|----|--|--|
| | 3.1 | Un sy | stème « modèle » : CTAB(0,3 M)/NaNO ₃ (0,405 M) $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$ | | | |
| | | 3.1.1 | État stationnaire | | | |
| | | 3.1.2 | Dynamique de l'interface | 51 | | |
| | | | 3.1.2.1 Dynamique à cisaillement imposé | 51 | | |
| | | | 3.1.2.2 Signature mécanique de l'instabilité | 55 | | |
| | | | 3.1.2.3 Influence de la géométrie | 58 | | |
| | | | 3.1.2.3.1 Variation de la hauteur \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots | 58 | | |
| | | | 3.1.2.3.2 Variation du rayon intérieur | 61 | | |
| | | | 3.1.2.4 Influence du paramètre de contrôle : contrainte imposée | 63 | | |
| | 3.2 | Une instabilité « générique » ? | | | | |
| | | 3.2.1 | Le système CPCl/NaSal | 67 | | |
| | | 3.2.2 | Discussion | 71 | | |
| | 3.3 | Struct | cure et dynamique de l'écoulement | 73 | | |
| | | 3.3.1 | Mise en évidence de cellules de convection | 73 | | |
| | | 3.3.2 | Corrélation entre dynamique interfaciale et écoulement $\ldots \ldots \ldots$ | 77 | | |
| | | 3.3.3 | Dynamique à haut cisaillement | 81 | | |
| | 3.4 | Moteu | ır de l'instabilité : mécanismes envisagés | | | |
| | | 3.4.1 | Instabilités d'origine inertielle | 83 | | |
| | | | 3.4.1.1 Instabilité de Taylor-Couette | 83 | | |
| | | | 3.4.1.2 Instabilité de Kelvin-Helmholtz | 84 | | |
| | | 3.4.2 | Instabilités à bas <i>Reynolds</i> | 84 | | |
| | | | 3.4.2.1 Instabilité entre deux films liquides cisaillés | 84 | | |
| | | | 3.4.2.2 Instabilité d'interface | 85 | | |
| | | | 3.4.2.3 Instabilité élastique | 86 | | |
| | 3.5 | Concl | usions et perspectives | 88 | | |
| 4 | Nuc | cléation de l'interface : comportement rhéo-optique transitoire | | | | |
| | 4.1 | Modè | èles constitutifs | | | |
| | | 4.1.1 | Un modèle phénoménologique | 90 | | |
| | | 4.1.2 | Un modèle basé sur Johnson-Segalman | 91 | | |

| | ation expérimentale du coefficient de diffusion de la contrainte | 94 | | | | |
|-------------------|--|-------------------------|--|------|--|--|
| | | 4.2.1 | Phénomènes temporels transitoires | 94 | | |
| | | 4.2.2 | Application à d'autres systèmes de micelles | . 99 | | |
| | 4.3 | Conclu | usion | 102 | | |
| 5 | Cha | os | | 105 | | |
| | 5.1 | Qu'est-ce que le chaos? | | | | |
| | | 5.1.1 | Introduction | 105 | | |
| | | 5.1.2 | Bifurcation de Hopf | 107 | | |
| | | 5.1.3 | Les scénarios de transition vers le chaos | 108 | | |
| | | 5.1.4 | Observations expérimentales du rhéochaos | 109 | | |
| | 5.2 | Le cas | de CPCl/NaSal 6,3% $\hfill \ldots $ | 110 | | |
| | | 5.2.1 | Analyse du signal temporel | 110 | | |
| | | 5.2.2 | Attracteur et exposant de Lyapunov | 113 | | |
| | 5.3 | Ouver | ture | 116 | | |
| Co | onclu | sion | | 119 | | |
| Bibliographie | | | | | | |
| Table des figures | | | | | | |

Table des matières

Introduction

Les fluides simples possèdent une structure à l'échelle moléculaire. Le temps caractéristique de réarrangement moléculaire de l'ordre de 10⁻¹² s, est suffisamment rapide pour que la structure du fluide et la viscosité apparente η ne soient pas affectées par un écoulement classique. En restant loin des seuils de déclenchement des instabilités hydrodynamiques, l'écoulement reste homogène et la relation entre la contrainte σ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ est linéaire ($\sigma = \eta \dot{\gamma}$). Par opposition, les fluides complexes possèdent une structure supramoléculaire. Cette structure peut se réorganiser sous écoulement et influencer celui-ci. Le temps caractéristique de réarrangement est de l'ordre de 10^{-3} à 100 s. Ce phénomène provient du couplage entre la structure du fluide et l'écoulement. Dans certains systèmes, un fort couplage structure - écoulement peut conduire à un écoulement homogène instable au-delà d'une sollicitation seuil, rendant la relation $\sigma = f(\dot{\gamma})$ non linéaire ($\sigma = \eta(\dot{\gamma})\dot{\gamma}$). Le système se sépare alors en bandes de tailles macroscopiques de différentes viscosités et cisaillements; il y a donc une localisation du cisaillement dans ces fluides. Ce phénomène est appelé bandes de cisaillement. Cette transition vers un état de coexistence en bandes de cisaillement est une instabilité largement observée dans de nombreux systèmes tels que les micelles géantes [1–5], les phases lamellaires lyotropes [6–8], les cristaux de colloïdes [9], les polymères téléchéliques [10–13], les milieux granulaires [14, 15], les matériaux vitreux mous [16], ou encore les mousses [17]. Les fluides complexes présentent un comportement intermédiaire entre solide et liquide, leur conférant des propriétés variées. On les rencontre fréquemment dans notre quotidien sous forme de gels cosmétiques ou alimentaires, dentifrice, cristaux liquides...

Les fluides étudiés dans cette thèse sont des systèmes micellaires composés d'un solvant newtonien, l'eau, et d'un tensio-actif, généralement accompagné d'un sel. Dans des conditions contrôlées de température, de concentration et de salinité, les molécules de tensio-actifs s'agrègent pour former des micelles vermiculaires flexibles. Ces micelles s'enchevêtrent de la même manière que les polymères pour former des solutions fortement viscoélastiques. Contrairement aux polymères, les micelles peuvent se casser et se recombiner à l'équilibre thermodynamique.

Le phénomène de bandes de cisaillement dans les micelles géantes est associé à un plateau dans la courbe d'écoulement $\sigma = f(\dot{\gamma})$ [5] s'étendant entre deux cisaillements seuils où deux bandes coexistent et sont réparties suivant la direction du gradient de vitesse.

Lorsqu'on applique un cisaillement sur le plateau à un système, il se sépare en deux bandes de différents cisaillements et viscosités. Les bandes de cisaillement peuvent être observées par biréfringence [18, 19] ou en mesurant les profils de vitesse au moyen de différentes techniques de vélocimétrie, comme la diffusion hétérodyne de la lumière [6], la résonance magnétique nucléaire [20] et la diffusion d'ultra-sons [21,22]. Salmon *et al* [23] ont observé que le cisaillement de chaque bande correspond au cisaillement d'entrée et au cisaillement de sortie du plateau. La continuité de la vitesse à l'interface entre ces bandes implique que la proportion de la bande fortement cisaillée croisse linéairement avec le cisaillement. Cette règle est appelée règle du levier. À cisaillement constant, la proportion de chaque bande est fixée, ainsi que la position de l'interface entre ces bandes.

Dans la dernière décénnie, des fluctuations dans la réponse rhéologique ont été observées [24–26], suggérant une dynamique plus complexe que le scénario que nous venons de décrire. Plusieurs techniques de vélocimétrie résolue en temps ont été développées permettant de suivre la dynamique de ces systèmes [26,27]. Des fluctuations de la position de l'interface ont été observées dans les profils de vitesse 1D [27,28]. Plus récemment, Lerouge *et al.* [4] ont observé dans un système micellaire l'interface entre bandes de cisaillement, grâce à une technique d'observation 2D. Ils ont mis en évidence une ondulation de cette interface dans la direction de la vorticité de la cellule de Couette qui a révélé un écoulement de base instable. Le mécanisme à l'origine de l'instabilité n'est pas établi. Pour comprendre le phénomène, il n'est plus possible de se contenter de mesurer la vitesse de l'écoulement dominant, il devient indispensable d'observer l'écoulement en 2D ou 3D ce qui représente actuellement un défi expérimental.

Pour rendre compte de la séparation en bandes de cisaillement, plusieurs modélisations ont montré une courbe constitutive d'écoulement composée de deux branches stables séparées par une zone instable de pente négative [29]. La limite de ces modélisations provient du fait qu'elles ne prédisent pas un unique plateau. Expérimentalement, la courbe d'écoulement n'admet qu'un unique plateau. Afin de résoudre ce problème, un terme de diffusion de la contrainte ou du cisaillement a été ajouté aux modèles permettant la sélection du plateau [30,31]. Ce terme nonlocal n'a été que peu étudié expérimentalement, or, il est fondamental pour décrire la courbe constitutive.

Dans cette thèse, nous étudions l'instabilité de l'interface entre bandes de cisaillement et tentons de comprendre l'écoulement des fluides micellaires présentant des bandes de cisaillement. Ce manuscrit est divisé en cinq chapitres, groupés en deux parties : la première partie expose le sujet, les bases nécessaires à la compréhension du sujet ainsi que les dispositifs expérimentaux et les fluides étudiés. La deuxième partie, subdivisée en trois chapitres, présente les résultats obtenus au cours de cette thèse et les avancées apportées. Dans un premier temps, nous caractérisons le comportement de l'interface entre ces bandes et sa dynamique. Jusque-là considéré comme unidirectionnel, nous montrerons que l'écoulement est en réalité tridimensionnel avec des cellules de convection en l'absence d'inertie. Ce résultat ouvre de nouvelles perspectives sur le plan de la compréhension de l'instabilité. Nous verrons que cette instabilité possède une signature mécanique et qu'elle est commune à d'autres systèmes. Nous discuterons du mécanisme potentiellement à l'origine de l'instabilité. Dans un deuxième temps, nous nous intéresserons à la mesure d'un effet non-local, la diffusion de la contrainte. Enfin, dans un troisième temps, nous verrons dans certains systèmes des comportements spécifiques dus à l'élasticité, menant vers le chaos et la turbulence.

Première partie

Généralités : fluides complexes et rhéologie

Chapitre 1

Introduction à la rhéologie et aux fluides complexes

L'objectif de ce chapitre est de poser les bases de la rhéologie et de définir un fluide complexe. Nous verrons plus particulièrement un type de fluide complexe, les systèmes micellaires, objet de cette thèse. Nous présenterons le comportement au repos et sous écoulement de ces systèmes. Nous verrons quelques instabilités présentes sous écoulement. Enfin, dans la dernière section, nous exposerons un bref historique de la thématique du sujet.

1.1 Définitions

La contrainte est le rapport de la force sur la surface sur laquelle elle s'exerce, $\sigma = \frac{F}{S}$. σ_{ij} est la composante *i* de la contraine appliquée sur la surface dont la normale est orientée suivant *j*. D'une manière générale, le tenseur des contraintes s'écrit :

$$\underline{\underline{\Sigma}} = \begin{bmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{31} & \sigma_{32} & \sigma_{33} \end{bmatrix}.$$
 (1.1)



FIGURE 1.1 – Composantes du tenseur des contraintes. Le principe de conservation du moment cinétique implique $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$.

Dans le cas d'un cisaillement simple $(\dot{\gamma} = \frac{v_x(y)}{e})$ entre deux plaques distantes de e (schématisé sur la figure 1.2), le tenseur des contraintes s'écrit :

$$\underline{\underline{\Sigma}} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & 0\\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & 0\\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{bmatrix},$$
(1.2)

où σ_{xy} est la contrainte tangentielle ou de cisaillement, $N_1(\dot{\gamma}) = \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ et $N_2(\dot{\gamma}) = \sigma_{yy} - \sigma_{zz}$ sont respectivement la première et la seconde différence des contraintes normales.



FIGURE 1.2 – Cisaillement simple entre deux plaques parallèles distantes de e.

1.2 Fluides complexes

1.2.1 Viscoélasticité linéaire

Les fluides complexes ont des comportements intermédiaires entre le solide parfait et le fluide simple. La figure 1.3 montre la déformation d'un matériau sous une contrainte σ générée par l'application de la force $F = \sigma S$ à la plaque. Un solide élastique parfait est décrit par la loi de Hooke :

$$\sigma = G_0 \gamma, \tag{1.3}$$

avec σ la contrainte, G_0 le module de cisaillement et $\gamma = \frac{u_0}{e}$ la déformation homogène dans l'échantillon. En supprimant la contrainte, le matériau retrouve sa forme initiale. Les solides idéaux ont la mémoire de l'état initial.

Un fluide Newtonien est un matériau pour lequel le taux de cisaillement est proportionnel à la force appliquée, il est décrit par la loi de Newton :

$$\sigma = \eta \dot{\gamma},\tag{1.4}$$

avec η la viscosité du fluide, $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement. Contrairement au solide parfait, le fluide simple n'a pas de mémoire de la déformation : lorsqu'on supprime la force, la déformation est irréversible et permanente. La déformation s'écrit $\gamma = \sigma t/\eta$ à σ constant.



FIGURE 1.3 – Cisaillement d'un matériau entre deux plaques parallèles de surface S distantes de e [32]. (a) déformation γ d'un solide parfait, (b) cisaillement $\dot{\gamma}$ d'un fluide simple imposé par la plaque supérieure. Issue de [32].

1.2. Fluides complexes

Maxwell fut le premier à proposer une description d'un matériau visco-élastique dans le régime linéaire [33], en combinant les lois de Hooke et de Newton. L'idée est de modéliser un fluide par un amortisseur visqueux, en série avec un ressort, représentant la composante élastique (figure 1.4). Dans ce modèle, le taux de déformation est la somme des contributions des éléments :

$$\dot{\gamma} = \dot{\gamma_r} + \dot{\gamma_p} = \frac{\dot{\sigma}}{G_0} + \frac{\sigma}{\eta_0},\tag{1.5}$$

où G_0 et η_0 sont le module élastique et la viscosité à gradient de cisaillement nul. En multipliant par η_0 l'équation 1.5, on obtient :

$$\eta_0 \dot{\gamma} = \tau_{Maxwell} \dot{\sigma} + \sigma. \tag{1.6}$$

Ce modèle possède un temps de réponse caractéristique $\tau_{Maxwell} = \frac{\eta_0}{G_0}$, appelé temps de relaxation de Maxwell.



FIGURE 1.4 – Représentation schématique du modèle de Maxwell : association en série d'un ressort (le solide, de module élastique G_0) et d'un amortisseur visqueux (le fluide, de viscosité η_0).

Il existe d'autres modèles basés sur des combinaisons en série et parallèle de ces éléments de base, comme les modèles de Voigt, Kelvin-Voigt, Jeffrey et Zener, que nous ne détaillerons pas ici, les fluides étudiés dans cette thèse étant toujours Maxwelliens dans le régime linéaire (c'est-à-dire aux faibles déformations).

1.2.2 Rhéogrammes

Pour classer les fluides, on étudie leur réponse, soit à une contrainte (σ) imposée, soit à un taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$) imposé, en traçant leur courbe d'écoulement. La figure 1.5 montre différents types de fluides : le fluide newtonien à viscosité constante, le fluide à seuil s'écoulant à partir d'une contrainte seuil et les fluides rhéoépaississants (respectivement rhéofluidifiants) dont la viscosité augmente (respectivement diminue) avec la contrainte.



FIGURE 1.5 – Courbes d'écoulement schématiques pour différents types de fluides.

1.2.3 Exemples de fluides complexes et leurs applications

Les fluides complexes sont présents partout dans la nature (lave, boues [34]) et dans notre quotidien (gel pour cheveux, dentifrice, savon liquide, cristaux liquides, mousses [17]...), dans l'alimentaire (ketchup, yaourt, gélatine, mayonnaise, mélange d'eau et de farine de maïs)... Le dentifrice, le ketchup, la mayonnaise et le yaourt sont des fluides dits rhéofluidifiants à seuil, car au repos, ils ont un comportement plutôt solide, mais s'écoulent facilement à partir d'une contrainte critique. Leur viscosité diminue et l'écoulement est facilité. À l'inverse, le mélange d'eau et de farine de maïs est un fluide rhéoépaississant : sa viscosité augmente avec la contrainte subie, ce fluide résiste lorsqu'on le force à s'écouler. De nouveaux matériaux de construction sont fabriqués avec un mélange à base de béton et de polymères pour donner au matériau une élasticité plus importante et ainsi une capacité à se déformer sans casser plus grande pour résister aux tremblements de terre. Pour récupérer le pétrole, les industriels injectent de l'eau dans les soussols pétrolifères avec un tensio-actif pour abaisser la tension interfaciale et permettre d'optimiser l'extraction du pétrole [35]. Ce procédé nécessite un fluide dont la viscosité est non seulement importante mais aussi ajustable en fonction de la température. Un fluide rhéofluidifiant permet de ne pas obstruer l'écoulement.

1.3 Micelles géantes

1.3.1 Morphologie des agrégats de molécules de tensio-actifs

Les micelles géantes sont des objets résultant de l'agrégation par auto-assemblage de molécules de tensio-actifs en solution aqueuse. Une molécule de tensio-actif est composée d'une « tête » hydrophile et d'une « queue » hydrophobe. Dans un solvant, à partir d'une concentration critique et à l'équilibre thermodynamique, ces molécules s'auto-assemblent pour former des structures afin que les parties hydrophobes des molécules ne soient plus en contact avec les molécules d'eau. Les têtes polaires sont à l'extérieur de la structure ainsi formée, en contact avec les molécules d'eau [36]. La figure 1.6 montre l'évolution de la forme des agrégats de tensio-actifs en fonction de la concentration en tensio-actifs. Dans le régime dilué, à très faible concentration, les molécules de tensio-actifs sont dispersées jusqu'à une concentration micellaire critique CMC_{I} où elles forment des micelles sphériques au dessus de la température de Kraft. En dessous de cette température, les molécules de tensio-actifs ne peuvent pas former de micelles. Elles démixent et cristallisent. À partir de CMC_{II}, des micelles cylindriques se développent. La flexibilité des micelles cylindriques est déterminée par la longueur de persistance (l_p). La longueur de persistance est la longueur, le long de la chaîne, au-delà de laquelle, les orientations des segments de chaîne sont décorrélées. En régime semi-dilué, compris entre les concentrations C^* et C^{**} , cette longueur de persistance atteint entre 20 et 50 nm. Dans ce régime, les micelles entrent en interaction et s'enchevêtrent. Cet enchevêtrement de longues micelles confère un caractère visco-élastique à la solution. La distance entre deux points de contact est la taille de maille ξ (figure 1.6).

Généralement, on ajoute un sel à la solution pour favoriser la croissance micellaire. Ce sel se dissout, introduisant des ions qui écrantent les répulsions électrostatiques des têtes des molécules de tensio-actifs. Aux faibles concentrations, les micelles ne présentent pas d'ordre orientationnel, la phase est alors qualifiée d'isotrope. Aux fortes concentrations, les micelles commencent à s'ordonner en s'orientant, comme le montre la figure 1.7. Cette transition du premier ordre [8] d'une phase isotrope (non-ordonnée) vers une phase nématique (ordonnée) apparaît pour une concentration critique en sel et tensio-actif spécifique à chaque système. Dans la phase nématique, les micelles présentent un ordre orientationnel à grande échelle. Au-delà, pour une

1.3. Micelles géantes

concentration critique plus élevée, une phase hexagonale apparaît. Dans la phase hexagonale, les micelles présentent un ordre orientationnel et translationnel à longue portée, elles sont orientées et positionnées de manière hexagonale.



FIGURE 1.6 – La morphologie des objets formés par les molécules de tensio-actifs dépend de la concentration. Les micelles ne peuvent se former qu'à partir d'une concentration critique (CMC_I) où elles sont sphériques. Puis à partir de CMC_{II}, les micelles sont cylindriques avec des extrémités en forme de calotte hémisphérique. À partir de la concentration C^* , la longueur et la densité des micelles sont suffisantes pour qu'elles s'enchevêtrent.



FIGURE 1.7 – Illustration schématique des différents types de phases rencontrées dans les systèmes micellaires en fonction des concentrations en tensioactifs et sel. Figure empruntée à la référence [8].

1.3.2 Modèle de Cates

Les micelles sont souvent appelées polymères vivants [37]. Contrairement aux polymères dont la longueur est fixée lors de la synthèse, elles peuvent se couper et se recombiner sous l'action de l'agitation thermique, et la distribution de leur longueur est déterminée à l'équilibre thermodynamique. Cet équilibre résulte de la compétition entre l'entropie de mélange qui tend à favoriser la formation de petits agrégats et l'énergie de scission qui favorise la croissance micellaire. L'énergie de scission est en fait l'énergie nécessaire à la formation de deux interfaces courbées hémisphériques aux deux extrémités d'une chaîne. Dans le cas de micelles neutres ou fortement écrantées, la longueur des micelles croît avec la concentration en tensio-actifs et l'énergie due à la courbure des extrémités (E_{ext}) des micelles comme :

$$\langle L \rangle \sim \phi^{\frac{1}{2}} exp\left(\frac{E_{ext}}{2k_BT}\right)$$
 (1.7)

Cates a développé un modèle microscopique [37,38] décrivant les systèmes de micelles géantes en régime semi-dilué. Ce modèle est basé sur deux phénomènes que sont la reptation des chaînes et la cassure-recombinaison de celles-ci. Le concept de reptation correspond à la diffusion des chaînes de polymères dans un réseau d'obstacles fixes. Les obstacles topologiques de l'environnement d'une chaîne la confine dans un espace analogue à un tube [39,40]. Le temps de reptation τ_{rep} correspond au temps nécessaire pour qu'une chaîne quitte son tube initial. La principale différence entre polymères et micelles vient du fait que ces dernières peuvent se casser et se recombiner sous l'effet de l'agitation thermique. Le temps de vie d'une micelle avant sa rupture est défini par τ_{break} . Si ce temps est plus court que celui de reptation, alors les micelles peuvent se scinder durant leur reptation. Les micelles filles oublient la configuration initiale de la mère, accélérant ainsi la relaxation de la contrainte. La combinaison de ces deux phénomènes donne un temps caractéristique de relaxation de la contrainte :

$$\tau_R \approx \sqrt{\tau_{break} \tau_{rep}}.\tag{1.8}$$

Le modèle prédit un unique temps de relaxation, qui correspond, dans le cas des systèmes étudiés, au temps de Maxwell.

1.3.3 Comportement sous écoulement : instabilité en bandes de cisaillement

La courbe d'écoulement schématique des solutions de micelles géantes en régime semi-dilué est présentée sur la figure 1.8 gauche. Elle présente un plateau rhéofluidifiant (région 2), pour lequel la viscosité de la solution diminue lors de l'augmentation du cisaillement, séparant deux branches (régions 1 et 3). Les solutions étudiées dans cette thèse se comportent en fluides Maxwelliens dans le régime linéaire, c'est-à-dire à bas cisaillements, sur la première branche (région 1). Sur la seconde branche, elles présentent un comportement rhéofluidifiant, comme cela a été montré sur un système spécifique par Salmon *et al* [23]. Le plateau en contrainte, pour $\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2$ (figure 1.8), a été mis en évidence pour la première fois par Rehage et Hoffmann [5]. Il est la signature rhéologique de la transition de ces systèmes vers un état en bandes de cisaillement.

D'un point de vue théorique, l'origine de ce phénomène provient de l'existence d'une zone de pente négative dans la courbe constitutive. Elle provient du couplage entre la structure supramoléculaire du fluide et l'écoulement, et peut être prédite par deux types de modèles : les modèles microscopiques [40, 41] et les modèles phénoménologiques [42]. Les modèles microscopiques sont basés sur la dynamique des micelles (reptation-cassure et relaxation des micelles). Les modèles phénoménologiques permettent quant à eux de rendre compte de la rhéologie des systèmes, tout en restant suffisamment simples pour permettre des études numériques détaillées [43].

La figure 1.8 droite présente un profil de vitesse schématique d'une solution micellaire cisaillée entre deux parois, celle de gauche étant mobile. Sur le plateau, le système se sépare en deux bandes supportant des cisaillements distincts, et le profil de vitesse est linéaire dans chacune de ces bandes. Les propriétés de la microstructure du système sont différentes entre les deux bandes. La phase fortement cisaillée (2), en vert, est fluide. Sous l'action du cisaillement une portion α_2 du fluide voit ses micelles s'aligner dans le sens de l'écoulement. La phase visqueuse, ici en rouge, présente des micelles faiblement orientées suivant l'écoulement. La variation du paramètre de contrôle influence les proportions relatives α_1 ($\alpha_1 = 1 - \alpha_2$) et α_2 (α_2 étant la proportion de la

1.3. Micelles géantes

phase fortement cisaillée) de chaque bande. La transformation de la phase faiblement en phase fortement cisaillée a été modélisée par la règle du levier $\dot{\gamma} = (1 - \alpha_2)\dot{\gamma}_1 + \alpha_2\dot{\gamma}_2$. La règle du levier résulte de la condition de continuité de la vitesse à l'interface.



FIGURE 1.8 – La figure de gauche montre une courbe d'écoulement schématique pour un système rhéofluidifiant de micelles géantes. Deux structures micellaires coexistent sur le plateau : l'une fluide présente des micelles fortement alignées dans la direction de l'écoulement, l'autre plus visqueuse présente un faible alignement des micelles. La figure de droite présente le profil de vitesse dans l'entrefer; la ligne en pointillés correspond à un écoulement homogène.

Le phénomène de séparation en bandes de cisaillement a été observé dans de nombreux fluides complexes de structure différente telles que les phases lamellaires lyotropes [6, 8, 44], les phases hexagonales [45], les cristaux de colloïdes [9], les polymères téléchéliques [10–13], les milieux granulaires [14,15], les solutions micellaires rhéofluidifiantes [3,8,23,46,47] ou encore les mousses [48-50].

La figure 1.9 montre trois types d'écoulements hétérogènes. Le schéma 1.9 (a) illustre un glissement apparent aux parois de minces couches de fluide fortement cisaillées. Dans ce cas, des couches de lubrification se forment aux parois et le cisaillement mesuré ne correspond pas au cisaillement du fluide, plus faible. Ce phénomène est observé dans les émulsions [51, 52]. Dans les systèmes de tensio-actifs, l'écoulement de cisaillement peut induire de nouvelles organisations microscopiques du matériau par couplage entre l'écoulement et la microstructure. Ces transitions ont lieu lorsque le cisaillement $\dot{\gamma}$ est de l'ordre de grandeur de l'inverse du temps caractéristique τ de la structure du fluide, c'est-à-dire lorsque $\dot{\gamma}\tau \simeq 1$. Dans ce cas, le profil de vitesse caractéristique de l'écoulement est de la forme 1.9 (b). Les milieux granulaires [14, 15], les mousses [17] et les boues [34] présentent généralement un profil de vitesse avec une bande en mouvement et l'autre fixe (figure 1.9 (c)).



FIGURE 1.9 – Profils de vitesse schématiques d'écoulements hétérogènes. Issue de [32].

- coexistence liquide-solide

1.3.4 Historique de la problématique

L'objectif de cette section est de retracer sommairement les avancées expérimentales dans l'étude des systèmes de micelles géantes pour situer le travail effectué dans cette thèse. Les propriétés d'écoulement sous cisaillement de systèmes de micelles géantes ont été largement étudiées depuis un quart de siècle. Les premiers à s'intéresser à leur rhéologie sont Rehage et Hoffmann [5, 53]. Les systèmes concentrés ont été, historiquement, les premiers étudiés avec différentes techniques de caractérisation de la structure au repos et sous écoulement, comme la biréfringence, la diffusion de neutrons et la résonance magnétique nucléaire. Plus récemment, les systèmes semi-dilués ont fait l'objet de mesures de profils de vitesse et diffusion de lumière. Nous présentons quelques expériences types.

L'une des premières observations de la séparation en bandes d'un système de micelles fut faite à l'aide de la biréfringence sur les systèmes concentrés [19] dans les années 90. Généralement, les mesures de biréfringence sont faites dans une cellule de Couette (ce système expérimental, composé de deux cylindres concentriques, sera détaillé au chapitre suivant). Une lumière polarisée est envoyée au travers de l'échantillon suivant la direction de la vorticité. Les quantités physiques mesurées sont la différence Δn entre les indices ordinaire et extraordinaire ainsi que χ l'angle d'extinction (angle entre l'axe principal du tenseur de l'indice de réfraction et la direction de la vitesse de l'écoulement). La figure 1.10 montre six photographies de l'entrefer d'une cellule de Couette pour différents cisaillements d'une solution concentrée de CPCl/Hex. La lumière collectée traverse un polariseur dont l'orientation est choisie pour correspondre à l'angle d'extinction de la solution au repos. (A) est prise pour un cisaillement avant le début du plateau. Sur les photographies (B-E) prises sur le plateau, plus le cisaillement est grand et plus la portion de la phase biréfringente induite par le cisaillement est importante. (F) au-dessus du plateau, sur la deuxième branche, l'intégralité de l'entrefer est occupée par la phase biréfringente induite. Sur les photos (A) et (F), la biréfringence est homogène dans l'entrefer et Δn est respectivement de l'ordre de -10^{-5} et -10^{-3} .



FIGURE 1.10 – Expérience de biréfringence dans une cellule de Couette d'entrefer 1 mm contenant une solution de CPCl-Hex (fractions massiques : $\phi_{CPCl}=28\%$, $\phi_{Hex}=3.9\%$). Un faisceau de lumière polarisée traverse l'échantillon dans la direction de la vorticité. Le polariseur et l'analyseur sont placés de telle sorte que sorte que la bande proche du stator apparaisse sombre. De A à F, lorsque l'on augmente le cisaillement, la phase induite devient plus importante et finit par remplir l'entrefer. Issue de [8].

Pour prouver que la bande biréfringente induite par le cisaillement correspond à une phase ordonnée dite nématique, Berret [8] a comparé la biréfringence d'une solution concentrée à haut cisaillement (sur la seconde branche) à celle d'une solution nématique à bas cisaillement (voir figure 1.11). Les concentrations des deux solutions sont très proches et les micelles ont les mêmes caractéristiques dans ces deux solutions. Ces deux phases ont les mêmes propriétés de biréfringence. Berret a conclu que la phase induite par le cisaillement correspond à une phase nématique.



FIGURE 1.11 – Comparaison de deux solutions de CPCl/Hex sous écoulement. La solution à gauche ($\phi_{CPCl}=28\%$, $\phi_{Hex}=3.9\%$) est isotrope au repos et la photographie est prise pour un cisaillement de 220 s⁻¹ correspondant à la seconde branche. La solution de droite est nématique au repos ($\phi_{CPCl}=29.1\%$, $\phi_{Hex}=4.1\%$) et sur la photographie, elle est cisaillée à 8.9 s⁻¹. Pour réduire l'intensité transmise un filtre vert a été placé sur le chemin optique. Issue de [8].

Pour caractériser l'organisation de la structure de la phase induite lors du cisaillement, des mesures de diffusion de neutrons ont été entreprises sur des systèmes concentrés proches de la transition isotrope-nématique [2, 54, 55]. Cette technique consiste à envoyer un faisceau de neutrons à travers l'échantillon sous écoulement dans une cellule de Couette transparente aux neutrons. Le faisceau est orthogonal à l'axe des cylindres. Un détecteur 2D est placé à l'opposé du point d'entrée et collecte le faisceau diffusé. Les figures de diffraction obtenues sont présentées sur la figure 1.12. Au repos (17a), la structure en anneau souligne une diffusion isotrope, ce qui signifie qu'il n'y a pas d'orientation particulière dans le réseau micellaire. Sur le plateau, la figure de diffraction devient anisotrope, ce qui se manifeste par l'apparition de croissants symétriques. À partir de (17b), la structure en anneau caractéristique du repos disparaît pour laisser place aux croissants. La figure de diffraction (18) est obtenue pour une concentration supérieure à la concentration de transition isotrope-nématique, lors d'un cisaillement de 100 s⁻¹. Cette figure de diffraction est très similaire à la figure (17c). Les auteurs ont conclu que la phase induite par le cisaillement, pour la solution de concentration inférieure à $c_{\rm IN}$, est fortement orientée et nématique.



FIGURE 1.12 – Intensité diffusée de neutrons dans le plan vitesse - vorticité $(\vec{v}, \vec{\omega})$ sur une solution de CPCl/Hex à une concentration proche de la transition isotropenématique [2,54]. Les cisaillements sont $\dot{\gamma}=0$ (17a), 64 (17b) et 213 s⁻¹ (17c). La figure de diffraction (18) est obtenue pour une phase nématique à $\dot{\gamma}=100 \text{ s}^{-1}$ [56]. Le maximum de diffusion $q^* \sim 0, 1 \text{ Å}^{-1}$ provient des interactions stériques entre micelles. Issue de [56].

La spectroscopie par résonance magnétique nucléaire (RMN) est également utilisée pour caractériser la microstructure de ces systèmes. Cette technique a été développée par Callaghan et

al. à la fin des années 90. Contrairement à la diffusion de neutrons, elle permet de résoudre spatialement la division du fluide en bandes en permettant d'enregistrer le signal RMN de la position du noyau et son déplacement [57,58]. Les molécules du solvant, D₂O, suivent l'alignement des structures formées par les micelles. La RMN apporte la confirmation que deux phases coexistent, l'une orientée générée par le cisaillement, l'autre sans ordre apparent [57]. La figure 1.13 présente le spectre du deutérium (²H) obtenu pour CTAB/D₂O ϕ =20% à 41°C. Près du cylindre tournant, où le cisaillement est plus grand, le double pic observé est cohérent avec une phase ordonnée. Près du cylindre fixe, le pic unique indique une phase isotrope, sans ordre. Ainsi, Callaghan a pu observer sous écoulement la séparation du fluide en bandes de différentes structures. Pour plus de détails sur la technique, le lecteur peut se référer à [58].



FIGURE 1.13 – Spectre obtenu par résonance magnétique nucléaire (RMN) sur le système concentré, $\phi = 20\%$, CTAB/D₂O pour différentes positions dans l'entrefer. Le double pic dans la région proche du rotor indique une phase nématique, tandis que le pic proche du stator semble indiquer une phase isotrope. Issue de [57].

La biréfringence et la diffusion de neutrons permettent de caractériser la structure micellaire au repos et sous écoulement. La vélocimétrie permet également d'observer la coexistence des bandes. Des mesures de profils de vitesse ont été réalisées essentiellement sur des systèmes semidilués. La technique de diffusion dynamique hétérodyne de la lumière développée par Salmon *et al.* [23,59] permet d'obtenir un profil de vitesse en quelques minutes pour une résolution spatiale de 50 μ m. Cet outil de vélocimétrie est basé sur la mesure du décalage Doppler en fréquence associé aux déplacements des diffuseurs (particules colloïdales de 30 nm, ajoutées à 1% en masse). Le principe de cette technique est de faire interférer la lumière ayant traversée l'échantillon avec le faisceau de référence. En analysant l'intensité résultant de cette interférence, on peut remonter à la vitesse [60].



FIGURE 1.14 – Profils de vitesse moyens mesurés par diffusion dynamique hétérodyne de la lumière [61] pour différents cisaillements sur CPCl/NaSal 6% dans de l'eau salée à 0,5 M à 21,5°C. Le plateau s'étend de 2,5 à 26 s⁻¹. La position y=0 mm marque la position du cylindre intérieur tournant et y=1 mm la position du cylindre extérieur fixe. Issue de [23].

1.3. Micelles géantes

Cette technique a été utilisée en 2003 pour mesurer la structure locale de l'écoulement de CPCl/NaSal 6% dans de l'eau salée. La figure 1.14 présente les profils de vitesse obtenus pour différents cisaillements en dehors et sur le plateau. Sur chaque graphique, la norme de la vitesse tangentielle est tracée en fonction de la position dans l'entrefer.

Les cisaillements de 1 et 28 s⁻¹ sont en dehors du plateau, respectivement sur la première et la seconde branche, et leur profil de vitesse associé est homogène. Les profils de vitesse sur le plateau apparaissent avec deux pentes distinctes. Sur le profil à 5 s⁻¹, la partie fortement cisaillée est petite (0,1 mm). Elle va croître avec le cisaillement pour remplir l'entrefer et revenir à un écoulement homogène.

La technique de diffusion hétérodyne de la lumière ne permet de mesurer qu'une composante de la vitesse supposée tangentielle. De plus, ces profils sont moyennés et ne permettent pas d'avoir accès aux fluctuations temporelles du profil de vitesse. Or, des indices suggèrent que l'écoulement est plus complexe. En effet, Bécu et al. ont mesuré des fluctuations locales du cisaillement en géométrie Couette sur le système concentré CTAB/ D_2O , $\phi_{CTAB}=20\%$, à l'aide d'une technique de vélocimétrie ultra-sonore. Cette technique consiste à envoyer des impulsions ultra-sonores à une fréquence centrée sur 36 MHz dans un milieu préalablement ensemencé de diffuseurs d'ultrasons. Dans [26], les diffuseurs sont des sphères de latex de 10 μ m (à une concentration massique en solution de 1%). Lorsque le fluide est sous écoulement, le signal rétrodiffusé, appelé « speckle », change en raison du déplacement des diffuseurs. En comparant deux signaux de *speckle* reçus pour deux impulsions successives, on déduit, après correction du décalage temporel entre l'émission des deux impulsions ultra-sonores, la vitesse des diffuseurs. Cette technique ne permet de mesurer qu'une projection de la vitesse suivant la direction du faisceau ultra-sonore. La référence [22] présente en détails cette technique. L'avantage de cette technique est que contrairement à la diffusion hétérodyne de la lumière, elle s'applique aux solutions diffusant fortement la lumière. La figure 1.15 est la représentation du cisaillement local en fonction du temps, déduit des profils de vitesse obtenus par vélocimétrie ultra-sonore, pour un cisaillement imposé de 50 s⁻¹. De 0 à 200 s, la position de l'interface entre bandes fortement et faiblement cisaillée varie fortement de 0,3 à 0,5 mm. Une zone faiblement cisaillée de plusieurs centaines de microns de large apparaît de manière intermittente au niveau du cylindre intérieur. Durant cette période, trois bandes de cisaillement coexistent et les profils de vitesse sont instables, dépassant la vitesse de rotation du cylindre mobile dans la zone proche de celui-ci.



FIGURE 1.15 – Représentation du cisaillement local $\dot{\gamma}(y,t)$ en niveaux de gris, déterminé par mesures de vélocimétrie ultra-sonore. Le noir correspond à $\dot{\gamma}=0$ s⁻¹ et le blanc à $\dot{\gamma} \ge 120$ s⁻¹. Les positions y = 0 et y = 1 mm correspondent respectivement à la position du cylindre tournant et du cylindre fixe. Le système CTAB/D₂O $\phi_{\text{CTAB}}=20\%$ à T=41°C subit un cisaillement fixe de 50 s⁻¹. Issue de [26].

Des fluctuations locales très similaires ont été également observées sur des systèmes semidilués. En effet, en 2004, Holmes *et al.* [27] ont mesuré des profils de vitesse en RMN toutes les secondes sur le système CPCl/NaSal 10% à 25°C. Ces mesures montrent des fluctuations importantes de la vitesse dans l'entrefer (fig. 1.16). Ces fluctuations du profil de vitesse peuvent être accompagnées de fluctuations de la réponse en contrainte et d'oscillations de l'interface entre bandes.

De plus, des mesures de biréfringence effectuées sur CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3 (1,79 \text{ M}) (c\simeq 11\%)$ ont montré un comportement fluctuant de la structure en bandes aux temps longs [62]. Lerouge *et al.* ont observé des fluctuations de la biréfringence de la bande induite. Des sous-bandes, de différents indices optiques et d'épaisseur typique comprise entre 100 et 150 μ m, évoluent dans l'entrefer à l'état stationnaire en contrainte. Ce genre de comportement fluctuant a été également observé sur des solutions de CPCl/NaSal par biréfringence [47,63].



FIGURE 1.16 – Profils de vitesse en fonction du temps enregistrés à une seconde d'intervalle en utilisant la RMN rapide dans une cellule de Couette d'1 mm d'entrefer. Le cisaillement imposé est de 37 s⁻¹ et le cylindre intérieur tournant est à droite, le fixe à gauche. Les niveaux de gris indiquent la norme de la vitesse de 0 à 25 mm.s⁻¹. La résolution spatiale est de 100 μ m. Le système est CPCl/NaSal 10% au ratio molaire R=[Sal]/[CPCl]=0,5 dans de l'eau salée à 0,5 M à une température de 25°C. Issue de [27].

En 2006, Lerouge *et al.* [4] ont observé en cellule de Couette, dans le plan vorticité-gradient de vitesse, une ondulation verticale de l'interface entre bandes de cisaillements. Le système CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3 (0,405 \text{ M})$ est placé dans l'entrefer (e=1,13 mm) d'une cellule de Couette thermostatée et cisaillé à 30 s⁻¹. Il est éclairé par une nappe laser radiale et les images de l'entrefer sont enregistrées par une caméra placée à 90° de la nappe (ce système expérimental sera détaillé au chapitre suivant). La figure 1.17 présente des photographies de l'entrefer au cours de l'expérience. Aux temps longs, l'interface est ondulée suivant la vorticité.

Cette technique expérimentale a révélé une instabilité de l'interface entre bandes de cisaillement suggérant un écoulement plus complexe.

Les données expérimentales accumulées sur les systèmes micellaires ont révélé une dynamique des bandes de cisaillement et de l'interface interbandes. De nombreuses techniques de mesures et d'observations ont été utilisé pour examiner le phénomène. Cependant, les mesures 1D ne semblent pas suffisantes pour comprendre l'écoulement. En effet, l'ondulation de l'interface obsevée en 2D par diffusion de lumière a révélé une dynamique plus complexe. L'objectif de cette thèse est de comprendre l'origine de ces fluctuations en étudiant la stabilité de l'interface interbandes de cisaillement. Nous utiliserons la technique d'observation 2D développée et utilisée par Lerouge *et al.* [4].



FIGURE 1.17 – Observation de la diffusion de la lumière d'une nappe laser radiale par CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3 (0,405 \text{ M})$ dans l'entrefer. Le cylindre intérieur tournant se situe sur la gauche des images et le fixe à droite. Le cisaillement imposé est de 30 s⁻¹. L'interface entre les bandes de cisaillements est ondulée à l'état stationnaire. Issue de [4].

1.4 Instabilités sous écoulement

1.4.1 Instabilités d'origine inertielle

1.4.1.1 Instabilité de Taylor-Couette

L'instabilité centrifuge ou Couette-Taylor se produit lors de l'écoulement d'un fluide en rotation. Elle fut observée pour la première fois en géométrie Couette (1890) dans les fluides Newtoniens. Cette géométrie est composée de deux cylindres concentriques de différents rayons. Le fluide est placé entre ces deux cylindres. Sous l'effet de la rotation du cylindre intérieur, le fluide est projeté sur les parois du cylindre extérieur. L'instabilité naît du gradient radial de la force centrifuge. Dans le cas où le cylindre extérieur tourne et l'intérieur est fixe, l'instabilité ne se développe pas. Le nombre de Taylor est le nombre critique caractérisant l'instabilité centrifuge. Pour le calculer, on considère un élément de fluide sphérique, de rayon r_0 et de densité ρ , auquel on communique une vitesse de convection (v_c) radiale perpendiculaire à son écoulement orthoradial moyen. Cette sphère perd de la quantité de mouvement par ralentissement visqueux dans un temps caractéristique τ_v . Comme la force de freinage visqueux, F_{visc} , est égale à $6\pi\eta r_0 v_c$, on obtient :

$$\frac{4}{3}\pi\rho r_0^3 \frac{dv_c}{dt} = -6\pi\eta r_0 v_c \text{ et } \frac{1}{\tau_v} = \frac{1}{v_c} \frac{dv_c}{dt} = A \frac{\nu}{r_0^2},$$
(1.9)

où A est un coefficient numérique de nature géométrique. Au bout du temps τ_v , la particule s'est déplacée d'une distance $\delta r \simeq v_c \tau_v$. L'ordre de grandeur de la force motrice F_m correspondra à la variation de la force centrifuge $mr\Omega^2(r)$, avec ω la vitesse angulaire du cylindre intérieur, sur la distance δr (passant de Ω à R_1 , à 0 à R_2) :

$$F_m = \frac{4}{3}\pi\rho r_0^3 \frac{\partial}{\partial r} (r\Omega^2(r))\delta r \simeq Br_0^3 \rho \frac{\Omega^2 R_1}{e} v_c \tau_v = \frac{B}{A} \frac{\rho}{\nu} v_c \Omega^2 \frac{r_0^5 R_1}{e}, \qquad (1.10)$$

où *B* est une constante géométrique, R_1 le rayon intérieur et $e = R_2 - R_1$. La limite supérieure étant $r_0 \simeq \frac{e}{2}$, en faisant le rapport de la force centrifuge sur la force visqueuse $\frac{F_m}{F_{visc}}$ et en ne tenant pas compte des coefficients géométriques, on trouve que le nombre de Taylor s'écrit [64] :

$$Ta = \frac{\Omega^2 e^3 \rho^2 R_1}{\eta^2}.$$
 (1.11)



FIGURE 1.18 – Schéma de la structure en rouleaux de l'instabilité de Taylor-Couette. Le cylindre intérieur tourne et le cylindre extérieur est fixe. La force centrifuge génère un écoulement secondaire sous forme de rouleaux toroïdaux empilés suivant la vorticité. Le diamètre des rouleaux est toujours celui de l'entrefer. Figures issues de [65] et http://www.mech.northwestern.edu/fac/lueptow/TC_Rich_new.html.

Le nombre de Taylor critique $Ta_c=1712$ [64] marque le seuil de l'instabilité à partir duquel l'instabilité se développe. Pour $Ta < Ta_c$, les effets inertiels sont négligeables devant la viscosité. Lorsque $Ta > Ta_c$, la force centrifuge domine et des cellules toroïdales, de diamètre égal à l'entrefer, empilées suivant la vorticité se forment (figure 1.18).

La figure 1.19 présente des photographies prises depuis de l'extérieur de la cellule des rouleaux de Taylor. Dans ce cas, le cylindre extérieur est maintenu fixe, seul le cylindre intérieur tourne. Sur ces photographies, le nombre de *Reynolds* est indiqué. Ce nombre est défini comme le rapport de l'effet inertiel sur l'effet de la viscosité. Il permet d'évaluer lequel de ces effets domine le transport de la quantité de mouvement et s'écrit :

$$Re = \frac{\Omega R_1 e \rho}{\eta},\tag{1.12}$$

où R_1 et Ω sont le rayon et la vitesse angulaire du cylindre intérieur, $e = R_2 - R_1$ l'entrefer, ρ et η sont respectivement la masse volumique et la viscosité du fluide. La relation $Ta = Re^2 \frac{e}{R_1}$ donne Ta en fonction de Re. Dans l'instabilité de Taylor (Re >> 1), le transport de la quantité de mouvement se fait essentiellement par convection.

À faibles Reynolds (a), des rouleaux stables se forment, en augmentant la vitesse de rotation, ils commencent à onduler (b) et puis pour des vitesses angulaires plus élevées, les cellules de Taylor deviennent faiblement turbulentes (c,d). La figure 1.20 présente les différents régimes observés par Swinney [66] en fonction des nombres de *Reynolds* imposés par la rotation des cylindres intérieur et extérieur.

1.4. Instabilités sous écoulement



FIGURE 1.19 – Photographies d'un écoulement Taylor-Couette vu de l'extérieur de la cellule. Le cylindre intérieur tourne tandis que le cylindre extérieur est maintenu fixe. Le fluide utilisé est de l'eau ensemencée de particules réfléchissantes afin de visualiser l'écoulement. Le nombre de *Reynolds* (*Re*) est indiqué pour chaque photographie. Le cisaillement croît de gauche à droite. (a) au début de l'instabilité, les rouleaux sont stables. (b) les rouleaux commencent à onduler. (c), (d) les rouleaux deviennent faiblement turbulents. Photographies issues de http://www.eng.nus.edu.sg/EResnews/0310/sf/sf_2.html.



FIGURE 1.20 – Régimes observés dans l'écoulement entre deux cylindres concentriques, avec $R_i = \frac{R_1(R_2 - R_1)\Omega_i}{\nu}$ et $R_o = \frac{R_2(R_2 - R_1)\Omega_o}{\nu}$. Cette figure est empruntée à la référence [66].

1.4.1.2 Instabilité de Kelvin-Helmholtz

L'instabilité de Kelvin-Helmholtz se produit lorsque deux couches de fluides en contact s'écoulent parallèlement à différentes vitesses. Le moteur de cette instabilité est la différence de vitesse entre les deux couches de fluide [67]. L'interface entre ces couches devient sinusoïdale et des rouleaux réguliers s'enroulant en spirale se forment. La photographie 1.21 en haut montre un exemple de cette instabilité entre deux masses d'air atmosphériques de différentes altitudes et vitesses. Les nuages permettent de visualiser les rouleaux à l'interface entre les deux couches d'air. La photographie 1.21 ci-dessous présente un exemple de cette instabilité dans le plan horizontal dans une tornade où l'air est en rotation. Les couches d'air ne tournent pas à la même vitesse, ce qui produit l'instabilité, visible grâce aux gouttelettes d'eau présentes dans l'air. Cette instabilité produit des rouleaux à grande échelle comme à petite échelle dans les fluides, voir [67]. La viscosité atténue légèrement la croissance de l'instabilité par diffusion de la quantité de mouvement. La différence de densité et la différence de tension superficielle entre les deux fluides ont un effet stabilisant [64].



FIGURE 1.21 – Instabilité de Kelvin-Helmholtz entre deux couches de fluide de différentes vitesses. Sur la photographie en haut : expérience réalisée par Thorpe [68] d'écoulement sur un plan incliné de deux fluides de différente densité. Sur la photographie du bas, l'instabilité se développe entre deux masses d'air de différentes altitudes et vitesses. Images extraites de [64] et http://www.extremeinstability.com.

1.4.2 Instabilités à bas Reynolds

1.4.2.1 Instabilité entre deux films liquides cisaillés

Cette instabilité se produit à l'interface entre deux fluides immiscibles de différentes viscosité et densité. Cette instabilité a été étudiée par Charru et Barthelet [69] dans une cellule annulaire à section rectangulaire. L'expérience est schématisée sur la figure 1.22. Les deux fluides sont placés dans l'anneau et la plaque supérieure est mobile. Au repos et pour les faibles vitesses de la plaque supérieure, l'interface entre les fluides est plane. Lorsque la vitesse de la plaque supérieure atteint une valeur critique, l'interface devient ondulée. En augmentant la vitesse, le motif ondulé périodique de l'instabilité primaire devient instable et une instabilité secondaire se développe. Cette instabilité secondaire peut, selon la vitesse, développer des motifs stationnaires



FIGURE 1.22 – À gauche : schéma de la cellule annulaire contenant les deux fluides. À droite : coupe longitudinale représentant l'instabilité interfaciale au-delà d'une vitesse U critique de la plaque supérieure. Figures extraites de [69].

ou non-stationnaires avec coalescence et nucléation d'ondes.

Le mécanisme physique à l'origine de l'instabilité de l'interface provient de la différence de viscosité entre les deux fluides [67, 70]. Si l'interface plane est légèrement perturbée, alors les vitesses de l'écoulement de base sont également perturbées. Pour satisfaire la continuité de la vitesse, la vitesse au niveau d'une crête doit augmenter. Au voisinage d'un creux, elle devra diminuer. Ces perturbations de la vitesse à l'interface vont amplifier la déformation et faire crôtre l'instabilité (figure 1.23).



FIGURE 1.23 – La situation (a) présente l'interface plane entre deux fluides immiscibles de viscosité $\eta_2 < \eta_1$, cisaillés par la plaque supérieure. Dans la situation (b), suite à une légère déformation de l'interface, pour satisfaire la continuité de la vitesse, la vitesse à l'interface au niveau d'une crête doit augmenter et au niveau d'un creux diminuer, renforçant l'instabilité. Issue de [67].

1.4.2.2 Instabilité élastique

Cette instabilité est due à l'anisotropie des contraintes normales des fluides complexes sous écoulement. La présence de contraintes normales se manifeste expérimentalement de différentes manières. Par exemple lors de l'extrusion d'une solution de polymères (figure 1.24 gauche), le jet de fluide marque un gonflement à la sortie de la conduite et lorsqu'on augmente la pression, le jet présente des irrégularités [71,72].

Un autre exemple de l'effet des contraintes normales est le *rod-climbing*, appelé effet *Weissenberg* [73] (figure 1.24 droite), pour lequel le fluide s'enroule et grimpe le long de l'axe tournant.

Un fluide élastique en écoulement entre deux plaques parallèles aura tendance à écarter les



FIGURE 1.24 – Deux manifestations de la présence des contraintes normales dans les fluides visco-élastiques. À gauche : photographie d'un jet d'une solution de polymères à la sortie d'un canal. La pression augmente en allant vers la droite. Des irrégularités apparaissent dans le jet précédant la fracture [71, 72]. Issue de http ://www.ilorentz.org/ saarloos/Patternf/meltfracture.html. À droite : l'effet *Weissenberg* fait grimper le fluide le long de l'axe tournant (http ://web.mit.edu/nnf/research/phenomena/rodclimbing.html).



FIGURE 1.25 – Expérience de Mueller [74] : visualisation d'un écoulement Taylor-Couette à l'aide de paillettes de mica. (a) pour de l'eau à Ta=3800, (b) pour un fluide visco-élastique de polyisobutylène à $Ta \sim 10^{-7}$ 10 minutes après le début du cisaillement et (c) après 30 minutes de cisaillement.

deux plaques, en raison des forces normales. Ces forces augmentent avec le cisaillement. En géométrie Couette, le développement de l'instabilité élastique est généralement lié à la courbure des lignes de courant.

Du point de vue microscopique, cet effet est généré par la courbure des lignes de courant. Sur la figure 1.26 a, on peut voir l'étirement d'un polymère par la plus grande courbure des lignes de courant vers le centre et le gradient de cisaillement. Ainsi, le centre de masse du polymère se déplace vers l'axe tournant. La figure 1.26 b permet de comprendre le mécanisme de l'instabilité dans un écoulement circulaire confiné. Les contraintes normales ont tendance à pousser un élément de fluide vers les régions où les lignes de courant sont davantage courbées. Si l'on considère une petite perturbation de l'écoulement, alors les lignes de courant deviennent comme celles indiquées en trait plein sur le schéma. Quelques éléments de fluide se déplacent légèrement vers l'extérieur, tandis que d'autres se déplacent vers les régions de plus grands cisaillements. La force effective poussant les éléments de fluides vers l'intérieur augmente, tandis que celle poussant



FIGURE 1.26 – Illustration de l'origine de l'effet *Weissenberg* dans une cellule de Couette : (a) un polymère se voit étiré et « poussé » vers l'intérieur de la cellule où la courbure est plus forte. (b) les lignes de courant faiblement perturbées sont indiquées en trait plein, tandis que celles non-perturbées sont en pointillés. Plus la courbure est forte et plus les polymères sont « poussés » vers le cylindre intérieur, rendant l'écoulement instable. Figure empruntée à la référence [77].

vers l'extérieur diminue (symbolisée par des flèches de différentes tailles). L'effet s'auto-amplifie, impliquant que l'écoulement est instable si les forces sont assez importantes.

La première analyse de stabilité linéaire d'une instabilité Taylor-Couette purement élastique est due à Giesekus [75,76]. Par la suite, Mueller [74] a la première mis en évidence expérimentalement une instabilité élastique. Il a visualisé des cellules de recirculations dans une solution de polyisobutylène dans de la decaline à $Ta \sim 10^{-2}$ (figure 1.25 b,c).

Le premier modèle théorique décrivant une instabilité purement élastique a été proposé par Larson *et al* [78]. Il est basé sur l'équation Oldroyd-B décrivant des fluides viscoélastiques nonrhéofluidifiants à un seul temps de relaxation :

$$\sigma_p + \lambda \left(\frac{\partial \sigma_p}{\partial t} + \vec{v}.\vec{\nabla}\sigma_p - (\vec{\nabla}\vec{v})^{\dagger}.\sigma_p - \sigma_p.(\vec{\nabla}\vec{v}) \right) = -\eta_p(\vec{\nabla}\vec{v} + (\vec{\nabla}\vec{v})^{\dagger}), \quad (1.13)$$

où λ est le temps de relaxation du fluide et σ_p le tenseur des contraintes viscoélastiques dues aux polymères.

Par l'étude de la stabilité linéaire de ce modèle, dans la limite des petits entrefers et pour $Re, Ta \rightarrow 0$, Larson a prédit une instabilité linéaire de l'écoulement de base pour un nombre de *Weissenberg* critique [65, 78]. Ce nombre permet de prédire le seuil de l'instabilité élastique en comparant la première différence des contraintes normales à la contrainte tangentielle. Il est pour l'instabilité élastique l'équivalent du nombre de *Taylor* pour l'instabilité centrifuge. Le seuil critique de l'instabilité a été prédit par Larson, Shaqfeh et Mueller, pour un fluide non-rhéofluidifiant décrit par l'équation *Oldroyd-B* [65, 78–80] :

$$\sqrt{\frac{e}{R_1}}Wi > Wi_c,\tag{1.14}$$

avec

$$Wi = \frac{N_1}{\sigma} = \frac{\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{rr}}{\sigma_{r\theta}},\tag{1.15}$$

où N_1 est la première différence des contraintes normales, σ la contrainte tangentielle mesurée à la surface du cylindre tournant et $Wi_c = 5,92$ le seuil critique de l'instabilité élastique pour un fluide défini à l'aide du modèle Oldroyd-B [65,78–80]. Notons que le caractère rhéofluidifiant est supposé abaisser le seuil de l'instabilité [81].
Chapitre 2

Système expérimental et caractéristiques des fluides étudiés

2.1 Rhéo-optique

Pour déterminer les propriétés rhéologiques des solutions micellaires, nous utilisons ici un rhéomètre rotatif avec différentes géométries. Ces géométries sont composées de deux parties : une mobile, le rotor et une fixe, le stator. L'échantillon de fluide est placé dans l'entrefer du rotor et du stator. Le rhéomètre utilisé est un Physica MCR 501 à couple contrôlé. Il permet d'imposer un couple constant Γ , dont on déduit la contrainte σ , et de mesurer la vitesse de rotation Ω , dont on déduit le cisaillement. Le rhéomètre permet également de fixer la vitesse à l'aide d'une boucle de rétroaction sur la contrainte. Au cours de cette thèse, nous avons réalisé des expériences utilisant les deux modes de fonctionnement. À partir de la contrainte et du cisaillement, le rhéomètre déduit la viscosité apparente de l'échantillon par le rapport de la contrainte sur le cisaillement ($\eta = \frac{\sigma}{\gamma}$).

2.1.1 Cellule de Couette

Ce système expérimental est composé de deux cylindres concentriques : le cylindre intérieur, de rayon R_1 , tourne tandis que le cylindre extérieur, de rayon R_2 , est maintenu fixe. Compte tenu de la symétrie de la géométrie, le champ de vitesse est de la forme $\vec{v} = v(r)\vec{u_{\theta}}$, et la seule composante non nulle du tenseur des contraintes $\sigma_{r\theta}$ est donnée par :

$$\sigma_{r\theta}(r) = \frac{\Gamma}{2\pi h r^2},\tag{2.1}$$

où Γ est le couple mesuré sur le cylindre intérieur tournant et h la hauteur du cylindre tournant. La contrainte n'est pas constante dans tout l'entrefer, et varie en $\frac{1}{r^2}$. Dans cette configuration en coordonnées cylindriques, le cisaillement, qui dépend également de la position dans l'entrefer, est donné par :

$$\dot{\gamma}(r) = -r\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v(r)}{r}\right),\tag{2.2}$$

qui peut être réécrit dans le cas de fluides Newtoniens comme :

$$\dot{\gamma}_{\text{r\'eel}}(r) = \frac{2\Omega R_1^2 R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \frac{1}{r^2},\tag{2.3}$$

où Ω est la vitesse angulaire du cylindre intérieur. Dans la limite d'un entrefer étroit, petit devant R_1 et R_2 , l'équation 2.3 conduit à :

$$\dot{\gamma}_{\text{apparent}} = \frac{R\Omega}{e}.$$
 (2.4)

Dans la limite d'un entrefer étroit, la contrainte σ et le cisaillement $\dot{\gamma}$ mesurés s'écrivent :

$$<\sigma>=\frac{R_1^2+R_2^2}{4\pi h R_1^2 R_2^2}\Gamma, <\dot{\gamma}>=\frac{R_1^2+R_2^2}{R_2^2-R_1^2}\Omega.$$
 (2.5)

La cellule de Couette développée au laboratoire est constituée de deux cylindres concentriques de hauteur h=40 mm, de rayon $R_1=13,33$ mm et $R_2=14,46$ mm. Le cylindre extérieur fixe et le fond de la cellule sont entourés d'une circulation permanente d'eau thermostatée, permettant de conserver l'échantillon à température constante durant l'expérience à $0,1^{\circ}$ C près. La cellule est fermée par un bouchon pour limiter la remontée du fluide le long de l'axe tournant par effet *Weissenberg* et l'inclusion d'air dans l'échantillon. Ce bouchon est surmonté d'une trappe baignant dans de l'eau pour empêcher l'évaporation de l'échantillon (voir l'encadré de l'image 2.2). Le cylindre extérieur est en plexiglas transparent, percé de deux fenêtres : une fenêtre d'observation et une fenêtre d'entrée de l'éclairage laser. La figure 2.1 représente schématiquement la cellule avec les trois configurations de visualisation de l'échantillon :

- Configuration 1. La première technique est celle utilisée dans [4, 82]. Elle consiste à illuminer l'échantillon à l'aide d'une nappe laser He-Ne radiale de longueur d'onde 633 nm et d'épaisseur 1,5 mm. Une caméra CCD Panasonic MV GS 400 (CCD1) de résolution 720x576 pixels enregistre à la cadence de 25 images par seconde l'intensité lumineuse diffusée à 90° dans l'entrefer, dans le plan vorticité gradient de vitesse. Ces images sont traitées à l'aide d'un programme développé au laboratoire sous Matlab pour détecter l'interface, son profil et son évolution.
- Configuration 2. La deuxième technique mise en place durant cette thèse, a été élaborée pour mettre en évidence des différences de concentration dans l'échantillon se traduisant par des fluctuations d'indice optique. Elle consiste à envoyer un faisceau de lumière blanche à travers l'échantillon et observer la diffusion de lumière par celui-ci avec la CCD1.
- Configuration 3. La dernière technique consiste à ensemencer la solution de particules réfléchissantes anisotropes et à illuminer la solution en lumière blanche de l'extérieur de la cellule. Dans le but d'observer la structure de l'écoulement, nous avons choisi un cylindre intérieur noir réfléchissant peu la lumière afin d'observer par contraste la lumière réféchie par les particules. Les particules choisies sont des paillettes de Kalliroscope (écailles de poisson) qui ont la particularité d'être anisotropes (30 μ m de longueur pour 7 μ m de largeur). Elles sont utilisées en faible concentration pour ne pas perturber l'écoulement. La face allongée s'oriente suivant les lignes de courant permettant de visualiser l'écoulement. Compte tenu de l'importante viscosité (50 à 200 Pa.s à gradient de cisaillement nul) des solutions étudiées, nous pouvons considérer l'effet de la sédimentation et de l'agitation thermique totalement négligeables. La lumière réfléchie par les paillettes est enregistrée par la caméra CCD2.

Les données optiques et rhéologiques sont enregistrées simultanément pour permettre leur corrélation. La photographie 2.2 donne un aperçu du dispositif expérimental. Notons que ce dispositif présente un léger défaut de coaxialité compris entre 5 et 20 μ m, à peu près uniforme sur la toute la hauteur du cylindre.



FIGURE 2.1 – Schéma du dispositif expérimental de la cellule de Couette. Les deux types d'éclairage sont utilisés pour visualiser l'interface avec la CCD1, ainsi que pour visualiser l'écoulement avec la CCD2. Le schéma de droite présente une vue du dessus de la cellule avec la recirculation d'eau permettant la thermostatation de l'échantillon.



FIGURE 2.2 – Photographie du système expérimental. Encadré en haut à gauche : agrandissement de la cellule de Couette thermostatée avec son bouchon pour empêcher le fluide de remonter par effet *Weissenberg* (voir la section *Instabilité élastique*) et sa trappe pour empêcher l'évaporation de l'eau.

2.1.2 Cône-plan

Cette géométrie est utilisée afin de mesurer la première différence des contraintes normales pour évaluer l'influence de l'élasticité sur l'instabilité et l'écoulement. Elle présente l'avantage d'utiliser une faible quantité de solution (0,6 mL). Le dispositif cône-plan est composé d'une surface plane fixe et d'un cône mobile de rayon R, faisant un angle θ_0 avec le plan. Le plan est thermostaté ce qui permet de contrôler la température de l'échantillon. Tandis que le cône est surmonté d'une trappe avec une réserve d'eau pour empêcher l'évaporation de l'échantillon pendant l'expérience. Pour les petits angles ($\theta_0 < 5^\circ$), le cisaillement et la contrainte sont homogènes dans l'entrefer et sont donnés par les relations suivantes :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\tan \theta_0}, \ \sigma = \frac{3\Gamma}{2\pi R^3}.$$
(2.6)



FIGURE 2.3 – Schéma du cône-plan utilisé pour les mesures des contraintes normales. $\theta_0 = 0.5^\circ$ et R = 2.5 cm. L'échantillon est placé entre le cône et le plan, dans la zone en gris clair.

2.2 Caractérisation des systèmes étudiés

Dans cette section, nous décrivons les systèmes étudiés et nous caractérisons leurs propriétés rhéologiques linéaires et non-linéaires en géométrie Couette.

2.2.1 Les échantillons

Dans cette thèse, nous avons utilisé deux tensio-actifs pour préparer différentes solutions de micelles géantes en régime semi-dilué.

Le premier système utilisé est composé d'un tensio-actif, le bromure de cétyltriméthylammonium (CTAB), et d'un sel, le nitrate de sodium (NaNO₃) dans de l'eau distillée. Le tensio-actif et le sel sont fournis par Acros Organics. Les propriétés non-linéaires de la solution ont été bien étudiées [83,84]. À la concentration choisie (0,3 M soit $\phi_{CTAB} \simeq 11\%$), le système est loin de la transition isotrope-nématique ($\phi_{CTAB} \approx 25\%$ d'après [8]), le système est en régime semi-dilué. Nous avons choisi d'étudier ce système, car c'est le premier système sur lequel la déstabilisation de l'interface a été observée. De plus, il possède des propriétés très voisines des premiers systèmes de micelles étudiés. Nous avons choisi de travailler avec le CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M), de formule semi-développée ((C₁₆H₃₃)-N⁺-(CH₃)₃-Br⁻), à 28±0,1°C afin de poursuivre l'étude menée dans [4,82].

Le deuxième système est composé d'un tensio-actif, le chlorure de cetylpyridinium (CPCl) et d'un sel, le salicylate de sodium (NaSal), en proportion molaire [NaSal]/[CPCl] = 0.5, dans de

l'eau salée à 0,5 M de chlorure de sodium (NaCl). Le salicylate a la particularité de participer à la micelle, en s'intègrant à celles-ci [5,85]. Le CPCl/NaSal est certainement le système de micelles géantes le plus étudié [1,5,8,32,53,86–92]. Pour étudier ce système, nous avons choisi de fixer la température à $22\pm0,1^{\circ}$ C et des concentrations totales comprises entre 6 et 12% pour rester en régime semi-dilué.

Le tensio-actif et le sel se présentent sous forme de poudre. Ils sont conservés dans des bidons étanches. Lors de la préparation d'une solution, le tensio-actif et le sel sont pesés séparément sur une balance de précision (à 10^{-4} g près) sous hotte. L'eau pure est pesée et ajoutée par la suite. Après avoir été préparés, les échantillons sont homogénéisés pendant une semaine, durant laquelle ils sont conservés dans des flacons hermétiques placés dans une étuve à une température constante de 34°C et à l'abri de lumière. Certaines solutions ont montré un changement de coloration à la lumière. Lors d'une expérience, la cellule de Couette est remplie, puis le cylindre intérieur est descendu dans l'échantillon. Pour finir, nous plaçons le bouchon fermant le haut de cellule. Celui-ci est surmonté d'une trappe remplie d'eau empêchant la solution de s'évaporer, ce qui aurait pour conséquence de modifier la concentration de tensio-actifs de l'échantillon au cours de l'expérience. La trappe est régulièrement alimentée en eau. Après le chargement de la cellule, la solution est laissée au repos pendant une période de 30 minutes lui permettant de se mettre à la température imposée par la circulation. Entre chaque expérience, l'échantillon est laissé au repos pendant une période de 5 minutes, afin de permettre sa relaxation complète avant la prochaine expérience (ce temps de relaxation est estimé à partir de la persistance des motifs observés à la section 3.3.1). En géométrie cône-plan, une goutte de 0.6 mL de solution est déposée à l'aide d'une seringue sur le plan au centre de la géométrie. Le cône est ensuite descendu en position de mesure, répartissant la solution dans l'entrefer du cône-plan. Le temps d'attente de mise en température de la solution est d'une minute environ. Ce temps est plus court qu'en géométrie Couette, car le volume de solution est beaucoup plus faible et parce que la température est ici contrôlée par un module Pelletier.

2.2.2 Rhéologie linéaire

Le module complexe de cisaillement est défini par :

$$\sigma(t) = G^* \gamma(t) = (G' + iG'')\gamma(t), \qquad (2.7)$$

où G' est le module élastique caractérisant le stockage de l'énergie élastique et G'' le module visqueux caractérisant la dissipation par frottements. Pour un fluide Maxwellien soumis à une déformation de faible amplitude, oscillatoire de pulsation ω , les modules élastiques et visqueux s'écrivent :

$$G'(\omega) = G_0 \frac{\omega^2 \tau_{Maxwell}^2}{1 + \omega^2 \tau_{Maxwell}^2},$$
(2.8)

$$G''(\omega) = G_0 \frac{\omega \tau_{Maxwell}}{1 + \omega^2 \tau_{Maxwell}^2},$$
(2.9)

avec $\tau_{Maxwell} = \frac{\eta_0}{G_0}$ le temps de Maxwell, η_0 la viscosité à gradient de cisaillement nul et G_0 le module plateau caractérisant l'énergie élastique stockée par la solution sous l'effet d'une déformation.



FIGURE 2.4 – G' : module élastique ou de stockage, G" : module visqueux ou de perte pour le système CPCl/NaSal 8% à 22°C en fonction de la pulsation ω (à gauche). La déformation imposée est de 5%. Diagramme Cole-Cole à droite. Le demi-cercle, obtenu pour $0, 1 \leq \omega \leq 20 \text{ s}^{-1}$, est caractéristique d'un système Maxwellien. Les ajustements sont réalisées pour $0, 1 \leq \omega \leq 20 \text{ s}^{-1}$ et les paramètres d'ajustements sont $G_0=124,7\pm0,5$ Pa et $\tau_{Maxwell}=0,65\pm0,01$ s.

Lorsque G' = G'', $\omega = \frac{1}{\tau_{Maxwell}}$. La figure 2.4 gauche montre les réponses G' et G'' en fonction de ω la pulsation, pour le système CPCl/NaSal 8% à 22°C donné ici à titre d'exemple. Aux basses pulsations ($\omega < \frac{1}{\tau_{Maxwell}}$), autrement dit aux temps longs, la réponse est dominée par la composante visqueuse donc le matériau se comporte comme un fluide visqueux. Aux grandes pulsations ($\omega > \frac{1}{\tau_{Maxwell}}$), aux temps courts, le matériau se comporte comme un solide élastique. La figure 2.4 droite présente G'' en fonction de G', plus connue sous le nom de diagramme Cole-Cole dont les données expérimentales forment un demi-cercle significatif du caractère Maxwellien de la solution. L'ensemble des systèmes étudiés sont Maxwelliens dans le régime linéaire. Leur module plateau (G_0 est associé à la zone où G' croît faiblement pour atteindre son maximum), viscosité à gradient de cisaillement nul (η_0) et temps de Maxwell sont présentés dans la table 2.1. G_0 et $\tau_{Maxwell}$ sont obtenus à partir des ajustements des mesures de G' et G'' avec les équations de Maxwell pour 0, $1 \le \omega \le 20 \text{ s}^{-1}$. Nous remarquons que plus la concentration massique totale de CPCl/NaSal est grande et plus la solution est visqueuse et rigide, ce qui est concordant avec les résultats obtenus par Berret *et al* [86,88]. Ceci s'explique par le fait que l'augmentation de la concentration en tensio-actifs et sel favorise la croissance micellaire. Le temps de relaxation devient légèrement plus long.

| Echantillon | T°C | G_0 (Pa) | η_0 (Pa.s) | $\tau_{Maxwell}$ (s) |
|------------------------|-----|-------------------|-----------------|----------------------|
| CTAB/NaNO ₃ | 28 | $219{\pm}0{,}8$ | 57 ± 1 | $0,26{\pm}0,01$ |
| CTAB/KBr | 34 | 235 ± 1 | $38 \pm 0,3$ | $0,16{\pm}0,01$ |
| CPCl/NaSal 6,3% | 22 | $78,6{\pm}0,6$ | $48,6\pm0,3$ | $0,57{\pm}0,01$ |
| CPCl/NaSal 8% | 22 | $124,7\pm0,5$ | $83{\pm}0,6$ | $0,\!65{\pm}0,\!01$ |
| CPCl/NaSal 10% | 22 | $185,8{\pm}0,3$ | $120{\pm}0{,}5$ | $0,66{\pm}0,01$ |
| CPCl/NaSal 12% | 22 | $236 {\pm} 0{,}5$ | 160 ± 1 | $0,66{\pm}0,02$ |
| CPCl/NaSal 14% | 22 | 310 ± 5 | $204{\pm}0{,}4$ | $0,7{\pm}0,05$ |

TABLE 2.1 – Module élastique plateau (G_0) , viscosité (η_0) et temps de Maxwell dans le régime linéaire pour les différents échantillons étudiés.

2.2. Caractérisation des systèmes étudiés

Les résultats trouvés dans le tableau 2.1 pour G_0 et $\tau_{Maxwell}$ sont en accord avec ceux trouvés par Berret et al. [88] à 25°C pour le CPCl/NaSal 6% (G_0 =62 Pa, $\tau_{Maxwell}$ =0,99 s), le 8% (G_0 =106 Pa, $\tau_{Maxwell}$ =1,07 s) et pour le 12% (G_0 =235 Pa, $\tau_{Maxwell}$ =1,02 s). Nos résultats corroborent ceux obtenus par Masselon [32] sur G_0 pour les différentes concentrations, et diffèrent sur le temps de relaxation de Maxwell (trouvé de 5 s environ pour les 6, 8, 10 et 12%). Notons que de telles différences sur le temps de Maxwell ont été observées par Britton et al. [3] entre différentes préparations d'une solution de CPCl(100mM)/NaSal(60). Pour CTAB/NaNO₃, les résultats sont également en accord avec Lerouge et al [4] à 30 °C (G_0 =238 Pa, $\tau_{Maxwell}$ =0,15 s).

2.2.3 Rhéologie non-linéaire

La figure 2.6 montre la courbe d'écoulement du système CTAB/NaNO₃ en géométrie Couette (•). La réponse mécanique de ce système avec le cisaillement est non-linéaire. Elle est composée de deux branches séparées par un plateau en contrainte de $\dot{\gamma}_1$ à $\dot{\gamma}_2$ qui marque un changement de pente à $\dot{\gamma}_+$. En géométrie Couette, le plateau a une pente positive, ce qui s'explique par le fait que la contrainte dépend du rayon comme le montre l'équation 2.10 :

$$\sigma(r) = \frac{\Gamma}{2\pi h r^2} = \sigma(R_1) \frac{R_1^2}{r^2} = \frac{2R_2^2}{R_1^2 + R_2^2} \sigma \frac{R_1^2}{r^2},$$
(2.10)

où Γ est le couple mesuré au rotor, h la hauteur, $\sigma(R_1) = \sigma_1$ la contrainte au rotor et σ la contrainte mesurée par le rhéomètre,

$$\sigma = \langle \sigma_{r\theta} \rangle = \frac{\sigma_{r\theta}(R_1)}{2} + \frac{\sigma_{r\theta}(R_2)}{2} = \frac{\Gamma(R_1^2 + R_2^2)}{4\pi h R_1^2 R_2^2}.$$
 (2.11)

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, le scénario des bandes de cisaillement considère deux bandes cisaillées à $\dot{\gamma}_1$ et $\dot{\gamma}_2$ (les valeurs d'entrée et de sortie du plateau), et séparées par une interface plane. La contrainte locale où l'interface est stable est notée σ^* . Si l'on part de l'hypothèse que la position de l'interface δ n'est stable qu'à la contrainte σ^* , alors d'après 2.10 on a :

$$\delta(\sigma_1) = R_1 \left(\sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} - 1 \right), \qquad (2.12)$$

dans la limite $e \ll R_1$, par un développement de Taylor de 2.12, on obtient :

$$\delta(\sigma_1) \simeq \frac{R_1}{2} \frac{\sigma_1 - \sigma^*}{\sigma^*}.$$
(2.13)

Lorsque $\delta = 0$, on a $\sigma_1 = \sigma^*$ et lorsque $\delta = e$, on a $\sigma_1 \simeq \sigma^*(1 + \frac{2e}{R_1})$. La non-uniformité de la contrainte engendre une pente du plateau, donnant une variation de contrainte $\Delta \sigma \simeq \frac{2e\sigma^*}{R_1}$. Théoriquement, on attendrait $\Delta \sigma \approx 27$ Pa, or cette variation est de 45 Pa sur la figure 2.6. Nous observons donc un excès de pente se traduisant par une variation de contrainte plus grande de 18 Pa. La courbure de la cellule de Couette n'explique donc pas à elle seule la pente du plateau. En revanche, en géométrie cône-plan, on n'attend théoriquement aucune pente du plateau, car dans la limite des petits angles, la contrainte est homogène dans l'échantillon. Seul l'excès de pente devrait être également présent avec cette géométrie. Nous avons donc mesuré la courbe d'écoulement de CTAB/NaNO₃ en géométrie cône-plan, figure 2.6 (\blacktriangle).

Pour chacune des géométries, la courbe d'écoulement est réalisée sur un échantillon « frais », c'est-à-dire qui vient d'être disposé dans la géométrie et que l'on a laissé se mettre à la température imposée par la thermalisation durant 30 minutes en géométrie Couette et une minute en géométrie cône-plan. La raison de cette différence est l'inertie thermique du système plus grande avec la circulation d'eau, qui nécessite ainsi plus de temps pour se mettre à la température fixée. La figure 2.5 présente un exemple de la réponse en contrainte de CTAB/NaNO₃ à 28°C pour un cisaillement de 10 s^{-1} en géométrie Couette. Le signal en contrainte est stationnaire au bout de 180 secondes. Nous avons donc choisi ce temps comme temps d'acquisition par point de mesure pour la courbe d'écoulement en géométrie Couette. Le nombre de 200 points de mesure a été choisi pour correspondre à la durée d'évaporation de la réserve d'eau dans la trappe. En géométrie cône-plan, une limitation vient s'additionner : sous l'action des contraintes normales, l'échantillon a tendance à être éjecté en dehors du cône-plan. Les contraintes normales augmentant avec le cisaillement, cet effet devient encore plus important aux hauts cisaillements, ce qui limite fortement le temps de mesure. Il convient alors de choisir un compromis entre temps d'acquisition par point de mesure et nombre de 200 s par point permettant de mesurer une valeur de la contrainte très proche de la valeur stationnaire, pour laquelle l'échantillon n'est pas éjecté aux hauts cisaillement (en fin de plateau), et 60 points de mesure.



FIGURE 2.5 – Réponse en contrainte du système CTAB/NaNO₃ à 28°C pour un cisaillement de 10 s⁻¹. Les fluctuations relatives de la contrainte deviennent inférieures à 0,5% au bout de 3 minutes, l'état stationnaire en contrainte est alors considéré atteint au bout de cette durée.

FIGURE 2.6 – Courbes d'écoulement de CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) à 28°C obtenues en cône-plan (\blacktriangle) et Couette (•). Le temps de mesure par point est de 30 s en cône-plan et 180 s en Couette. Le plateau en contrainte commence à $\dot{\gamma}_1=4,9\pm0,2$ s⁻¹ pour une contrainte $\sigma_p = 146 \pm 0,6$ Pa et finit à $\dot{\gamma}_2=91\pm5$ s⁻¹. $\dot{\gamma}_+=56\pm3$ s⁻¹ marque le changement de pente du plateau (valeurs indiquées pour la géométrie Couette en rouge).



FIGURE 2.7 – Évolution de la viscosité en fonction du cisaillement en géométrie Couette. L'encadré montre un grossissement aux hauts cisaillements où la viscosité augmente à partir de 110 s^{-1} (rhéoépaississement de la seconde branche).

La première branche est rigoureusement la même en géométrie Couette et en cône-plan. Le maximum observé au début du plateau de la courbe d'écoulement résulte d'un temps d'acquisition (30 secondes par point) inférieur au temps nécessaire pour atteindre l'état stationnaire (3 minutes). En effet, ce genre de maximum en début de plateau a été observé par Berret *et al* [87] ainsi que Grand *et al.* [90] et associé à des états métastables du système. Le temps de mesure en cône-plan est limité, car la difficulté est essentiellement de pouvoir maintenir l'échantillon entre le cône et le plan, ce qui n'est possible que pour une durée très limitée aux grands cisaillements en raison des contraintes normales. En géométrie cône-plan, le plateau ($4.8 \leq \dot{\gamma} \leq 55 \text{ s}^{-1}$) est plus petit qu'en géométrie Couette. Ceci est dû au fait que la seconde branche est interceptée à une valeur plus basse en contrainte, en raison de l'absence de pente du plateau dans cette géométrie et contrairement à la géométrie Couette. Nous discutons de l'origine de cette pente anormalement grande en Couette au début du chapitre suivant.

En géométrie Couette, le plateau est composé de deux régions de pente différente ($\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_+$ et $\dot{\gamma}_+ < \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2$). Sur chacune de ces régions, nous ajustons les données expérimentales avec une loi de puissance $\sigma = A\dot{\gamma}^{\alpha}$. Pour $\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_+$, nous obtenons pour les paramètres de l'ajustement, $A=130\pm0.4$ Pa.s^{α} et $\alpha=0.08\pm0.001$, et pour $\dot{\gamma}_+ \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2$, $A=100\pm1.9$ Pa.s^{α} et $\alpha=0.148\pm0.005$. Cette évolution du plateau est identique à celle observée dans [4] et reproductible. Notons que ce changement de pente s'observe sur différentes concentrations de CPCl/NaSal.

La seconde branche de la courbe d'écoulement en Couette se décompose en deux parties. Tout d'abord, pour $\dot{\gamma}_2 \leq \dot{\gamma} \leq 110 \text{ s}^{-1}$, elle présente une évolution en loi de puissance avec A=61 Pa.s^{α} et α =0,26 indiquant un comportement rhéofluidifiant. Ce comportement rhéofluidifiant en sortie de plateau a été observé par Salmon *et al.* sur CPCl/NaSal 6% à 21,5°C en rhéologie et avec des mesures de vélocimétrie locale [23]. Ils n'ont cependant pu explorer qu'une faible partie de la seconde branche. Pour $\dot{\gamma} \geq 110 \text{ s}^{-1}$, la seconde branche présente un rhéoépaississement apparent, comme le montre l'augmentation de la viscosité dans l'encadré de la figure 2.7.

Le chlorure de cétylpyridinium avec du salicylate de sodium (CPCl/NaSal) est le système dont la rhéologie a été la plus étudiée [8]. La figure 2.9 présente la contrainte normalisée par le module plateau en fonction du taux de cisaillement normalisé par le temps de Maxwell pour les différentes concentrations de CPCl/NaSal à 22°C. Le temps d'acquisition pour chaque point de mesure est de 5 minutes pour le 14% et 3 pour les autres concentrations. Ce temps a été choisi pour permettre d'atteindre l'état stationnaire en contrainte pour un cisaillement imposé (voir figure 2.8). Nous retrouvons la superposition des premières branches des courbes d'écoulement normalisées observée par Berret [8].



FIGURE 2.8 – Réponse en contrainte du système CPCl/NaSal 10% à 22°C pour un cisaillement de 4 s^{-1} . Les fluctuations de la contrainte cessent au bout de 3 minutes, l'état stationnaire en contrainte est atteint avec certitude au bout de cette durée.

FIGURE 2.9 – Diagramme d'écoulement pour les différentes concentrations de CPCl/NaSal à 22°C. La contrainte normalisée par le module plateau G_0 est tracée en fonction du taux de cisaillement normalisé par le temps de Maxwell, $\dot{\gamma}\tau_{Maxwell}$. Chaque courbe est définie par 200 points de mesure. Le temps d'acquisition pour chaque point de mesure est de 5 minutes pour le 14% et 3 minutes pour les autres concentrations.

FIGURE 2.10 – Variation de la contrainte sur le plateau attendue en raison de la géométrie (\blacksquare) et variation de la contrainte mesurée (\blacktriangle) en fonction de la fraction massique totale.

2.2. Caractérisation des systèmes étudiés

La figure 2.10 présente la variation de la contrainte attendue, due à la géométrie, et la variation de contrainte mesurée entre le début et la fin de plateau sur la courbe d'écoulement pour les différentes concentrations de CPCl/NaSal. La variation de contrainte mesurée est systématiquement plus grande que celle attendue. Cet écart augmente avec la concentration.

À l'exception de 6,3%, tous les systèmes présentent un changement de pente de leur plateau à $\dot{\gamma_+}$, comme le système précédent. Nous avons divisé le plateau en deux régions, pour $\dot{\gamma_1} \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma_+}$ (région 1 du plateau), et pour $\dot{\gamma_+} \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma_2}$ (région 2). Pour chaque région, les données expérimentales sont ajustées par une loi $\sigma = A\dot{\gamma}^{\alpha}$. Les figures 2.12 gauche et droite présentent les valeurs des paramètres A et α obtenus par les ajustements, respectivement pour la région 1 et 2. Pour la région 1, nous avons ajusté α avec une exponentielle décroissante avec la concentration massique en tensio-actifs, comme le montre l'ajustement en trait plein sur la figure 2.12 gauche. Néanmoins, nous ne disposons pas d'une gamme de variation suffisamment importante pour conclure sur l'évolution de α avec la concentration. Plus la fraction massique ($\phi = \phi_{CPCl} + \phi_{NaSal}$) est importante et plus la pente du plateau dans la région 1 est faible. Pour la région 2, c'est le contraire : la dépendance avec $\dot{\gamma}$, et donc la pente du plateau, augmente avec la concentration. Notons enfin qu'il ne nous a pas été possible d'ajuster le plateau du système CPCl/NaSal 14% avec une loi de puissance.

Les tables 2.2 et 2.3 donnent respectivement les caractéristiques du régime non-linéaire (plateau de chaque solution) et les nombres adimensionnés associés à chaque système. Pour CTAB/KBr, le cisaillement de fin de plateau est extrait de la littérature [93]. Il ne nous a pas été possible de le mesurer en raison de l'effet *Weissenberg*.

En raison de ce même effet, la seconde branche de CPCl/NaSal n'a été que peu étudiée. Berret n'a pu observer qu'une faible portion de cette branche pour les faibles concentrations de CPCl/NaSal [8]. Notre dispositif expérimental nous a permis de l'explorer davantage. Nous observons que la seconde branche des CPCl/NaSal présente un rhéoépaississement apparent. Comme le montre la figure 2.9 gauche, à partir de $\dot{\gamma}_2$, la contrainte augmente considérablement. Les courbes de viscosité en fonction du cisaillement, figure 2.11, présentent une augmentation de la viscosité sur la seconde branche, indiquant un rhéoépaisissant apparent.



FIGURE 2.11 – Évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les différentes concentrations de CPCl/NaSal à 22°C. La figure de droite montre un agrandissement à haut cisaillement. On distingue une augmentation de la viscosité sur la seconde branche. Cette augmentation est limitée en raison de l'importance de l'effet *Weissenberg* aux hauts cisaillements.



FIGURE 2.12 – Évolution des paramètres d'ajustements A (\blacktriangle) et α (\bullet) en fonction de la concentration massique totale en CPCl/NaSal pour $\dot{\gamma_1} \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma_+}$, à gauche, et pour $\dot{\gamma_+} \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma_2}$, à droite.

| Echantillon | $T^{\circ}C$ | $\dot{\gamma}_1~(\mathrm{s}^{-1})$ | $\dot{\gamma}_{+} ({ m s}^{-1})$ | $\dot{\gamma}_2~(\mathrm{s}^{-1})$ | σ_p (Pa) |
|-----------------------------|--------------|------------------------------------|-----------------------------------|------------------------------------|-----------------|
| $CTAB/NaNO_3$ | 28 | $4,9{\pm}0,2$ | 56 ± 3 | 91 ± 5 | 146 ± 1 |
| CTAB/KBr | 34 | $10{\pm}2$ | - | 510 ± 10 | 120 ± 8 |
| $\mathrm{CPCl/NaSal}$ 6,3% | 22 | $2,3{\pm}0,1$ | - | $21,4{\pm}1,2$ | $58,2{\pm}0,3$ |
| CPCl/NaSal 8% | 22 | $1,8{\pm}0,1$ | $13,9{\pm}0,4$ | $22,2{\pm}0,9$ | 87±1 |
| $\mathrm{CPCl/NaSal}\ 10\%$ | 22 | $1,5{\pm}0,1$ | $13{\pm}0,\!6$ | $20,6{\pm}0,9$ | $118 {\pm} 0,7$ |
| $\mathrm{CPCl/NaSal}\ 12\%$ | 22 | $1,2{\pm}0,4$ | $13,8{\pm}0,5$ | $21,1{\pm}1$ | 141 ± 1 |
| CPCl/NaSal 14% | 22 | $0,92{\pm}0,1$ | $13,7{\pm}0,5$ | $26,1{\pm}1,2$ | $157,3{\pm}0,9$ |

TABLE 2.2 – Ce tableau donne les valeurs caractéristiques obtenues par la rhéologie dans le régime non-linéaire pour les fluides utilisés.

| Echantillon | T°C | $\delta \dot{\gamma} \tau_{Maxwell}$ | $\frac{\sigma_p}{G_0}$ | $rac{G_0 	au_{Maxwell}}{\eta_0}$ |
|------------------------|-----|--------------------------------------|------------------------|-----------------------------------|
| CTAB/NaNO ₃ | 28 | 22,4 | 0,67 | 1,04 |
| CTAB/KBr | 34 | 80 | 0,51 | 1 |
| CPCl/NaSal 6,3% | 22 | 10,9 | 0,74 | 0,92 |
| CPCl/NaSal 8% | 22 | 13,3 | 0,7 | 0,98 |
| CPCl/NaSal 10% | 22 | 12,6 | 0,64 | 1,02 |
| CPCl/NaSal 12% | 22 | 13,1 | 0,6 | 0,97 |
| CPCl/NaSal 14% | 22 | 17,64 | 0,51 | 1,06 |

TABLE 2.3 – Nombres adimensionnés caractéristiques associés à chaque système. $\Delta \dot{\gamma} = \dot{\gamma_2} - \dot{\gamma_1}$ représente la largeur de plateau.

Deuxième partie

Étude expérimentale de la stabilité d'écoulements de Taylor-Couette de solutions de micelles géantes

Chapitre 3

Déstabilisation de l'interface et écoulement tri-dimensionnel

Dans ce chapitre, nous étudions le profil de l'interface entre bandes de cisaillement au cours du temps. Les observations optiques sont corrélées à la réponse rhéologique de l'échantillon. En utilisant, différentes configurations de visualisation de l'interface et de l'écoulement dans l'entrefer décrites au chapitre précédent, nous examinons la dynamique de deux systèmes de micelles géantes.

3.1 Un système « modèle » : $CTAB(0,3 \text{ M})/NaNO_3(0,405 \text{ M})$

Ce système présente une réponse mécanique typique des systèmes de micelles géantes sous écoulement [8] : dans le régime linéaire, c'est un fluide Maxwellien, et en régime non-linéaire il présente un plateau en contrainte dans sa courbe d'écoulement, sur lequel la présence de bandes de cisaillement a été mise en évidence notamment par biréfringence [62,94]. Son comportement sous écoulement a été étudié [4, 62, 82, 84, 94]. La référence [94] présente une étude du régime transitoire, dans laquelle des mesures rhéologiques sont réalisées simultanément avec des mesures de diffusion de lumière en géométrie Couette. La réponse en contrainte, composée d'un overshoot suivi d'oscillations amorties, y est étudiée et corrélée aux mesures optiques d'intensité diffusée. Dans [84], le régime stationnaire de CTAB/NaNO₃ est étudié. L'influence de la température et de la concentration en sel et tensioactifs sur la largeur du plateau y est démontrée. Les références [4, 82] présentent une étude en régime transitoire et stationnaire avec des mesures rhéologiques et optiques corrélées en géométrie Couette. La déstabilisation de l'interface y est pour la première fois observée [4] et est associée à un écoulement secondaire [82]. Trois régimes dynamiques de l'interface y sont identifiés [82]. Le système expérimental utilisé est repris ici. Ces références ont servi de base expérimentale à ce travail de thèse. Nous nous proposons de poursuivre le travail initié dans ces références sur l'écoulement en bandes de cisaillement et sur la déstabilisation de l'interface entre bandes de cisaillement de ce système.

3.1.1 État stationnaire

Dans cette section, nous décrivons l'état stationnaire mécanique (décrit au chapitre précédent) et optique du système en réponse à un taux de cisaillement fixe.

La courbe d'écoulement (figure 3.1) présente deux branches séparées par un plateau rhéofluidifiant s'étendant de $\dot{\gamma}_1 = 4,8 \pm 0,6 \ s^{-1}$ à $\dot{\gamma}_2 = 92 \pm 5 \ s^{-1}$. La première branche $(0 \le \dot{\gamma} \le 4, 8 \text{ s}^{-1})$ montre un entrefer sombre : l'échantillon ne diffuse pas la lumière, comme le montre la photographie à 2 s⁻¹ de la figure 3.1.

La seconde branche ($\dot{\gamma} \ge 92 \text{ s}^{-1}$) présente deux comportements successifs : tout d'abord rhéofluidifiant, le système devient fortement rhéoépaississant en apparence à mesure que le cisaillement augmente. Dans la gamme de cisaillements comprise entre 92 et 110 s⁻¹, la phase induite a rempli l'entrefer et la turbidité est homogène spatialement. Les mesures de biréfringence ont montré que la réponse non-linéaire est associée à une forte orientation et un étirement du réseau micellaire [95]. La déformation du réseau lors de l'écoulement va se produire principalement dans les régions de faible densité d'enchevêtrements, produisant dès le début de l'écoulement des objets de taille microscopique organisés suivant la direction de l'écoulement. Le réseau étiré pourrait générer un dichroïsme (anisotropie de la lumière diffusée). Plusieurs expériences de diffusion de lumière aux petits angles ont révélé des figures de diffusion en forme de papillon [47,94]. Récemment, Schubert *et al.* ont montré dans un système micellaire que l'apparition d'un dichroïsme induit par l'écoulement est responsable de la turbidité [96]. De plus, Kadoma *et al.* ont montré sur une solution semi-diluée, la présence d'hétérogénéités de concentration de micelles de l'ordre de quelques tailles de maille avec des régions de differentes densités d'enchevêtrements [97].

À partir de 120 s⁻¹, la courbe d'écoulement est fortement rhéoépaississante. L'échantillon présente une forte résistance à l'écoulement. Les observations montrent un désordre spatial de zones fortement et faiblement turbides. La distribution spatiale de ces zones varie fortement dans le temps. Ces perturbations démarrent des bords supérieur et inférieur du rotor, et s'amplifient avec le cisaillement. Groisman et Steinberg ont étudié une solution viscoélastique diluée de polymères [98,99] présentant à partir d'un cisaillement seuil, à bas $Re (10^{-3})$, le même comportement de forte résistance à l'écoulement et de désorganisation de celui-ci. Ils ont interprété ce résultat comme une caractéristique d'un état de turbulence provenant de l'élasticité du fluide, et l'ont nommé de ce fait, turbulence élastique.



FIGURE 3.1 – Courbe d'écoulement de CTAB/NaNO₃ à 28°C. Elle est composée de 200 points de mesure répartis sur une rampe logarithmique. Le temps d'acquisition est de 180 s par point. Les images de l'entrefer sont prises en *configuration 1* pour différents cisaillements à l'état stationnaire. Le plateau rhéofluidifiant est délimité par $\dot{\gamma}_1$ =4,8±0,6 s⁻¹ et $\dot{\gamma}_2$ =92±5 s⁻¹.

Sur le plateau $(4, 8 \leq \dot{\gamma} \leq 92 \text{ s}^{-1})$, le système se sépare en deux phases, l'une turbide proche du rotor, l'autre non turbide proche du stator. L'interface entre bandes de cisaillement apparaît ondulée (photographie à 40 s⁻¹ sur la figure 3.1). Nous appellerons minimum de l'interface, la partie de l'interface la plus proche du rotor et maximum la partie la plus éloignée du rotor. Plus le cisaillement est élevé sur le plateau, plus la proportion de phase turbide est importante jusqu'à remplir l'intégralité de l'entrefer à $\dot{\gamma}_2$: la phase non turbide est convertie en phase turbide. Cette



FIGURE 3.2 – Règle du levier pour CTAB/NaNO₃ à 28° C.

proportion évolue de manière linéaire avec le cisaillement et respecte relativement bien la règle du levier évoquée au chapitre 1 (figure 3.2).

Au chapitre 2, nous avons vu que le plateau présente une pente anormalement élevée. Cette pente anormalement élevée du plateau peut s'expliquer par des fluctuations de concentration. Helfand et Frederickson ont proposé un modèle [100] dans lequel des fluctuations de concentration en polymères dans une solution sont générées sous écoulement. L'idée est de considérer une molécule de polymère dans un milieu inhomogène, plus étirée que la moyenne. À l'échelle de la taille de maille, la densité d'enchevêtrements peut être plus importante dans certaines zones et moins importante dans d'autres, générant l'inhomogénéité du milieu. En relaxant vers son état d'équilibre, les parties de la molécule dans la région de basse viscosité se déplaceront davantage que les parties situées dans les régions enchevêtrées de forte viscosité. Ainsi, des différences de concentration peuvent naître, puis croître. Ce mécanisme a été repris par Fielding pour un fluide obéissant à l'équation diffusive Johnson-Segalman présentant des fluctuations de concentration [101]. Il ressort de ces simulations numériques qu'en l'absence de couplage, le plateau de la courbe d'écoulement constitutive du fluide ne présente pas de pente. Plus le couplage est important et plus la pente du plateau est grande, ceci s'accompagne d'un léger décalage de la valeur d'entrée sur le plateau $\dot{\gamma}_1$ vers des valeurs plus faibles. Or, nous avons vu au chapitre 2 qu'en géométrie Couette, le plateau présente une pente anormalement élevée et qu'en géométrie cône-plan, nous n'observons pas de pente du plateau. S'il y a un couplage, il devrait être observable avec les deux géométries. S'il y a un couplage entre concentration et écoulement, il doit être faible, car nous ne l'observons pas en géométrie cône-plan. Nous y reviendrons en section 3.3.

3.1.2 Dynamique de l'interface

3.1.2.1 Dynamique à cisaillement imposé

La figure 3.3 illustre les étapes de formation des bandes et de déstabilisation de l'interface pour un cisaillement de 30 s⁻¹. Initialement au repos, l'échantillon ne diffuse pas la lumière (t=0s). Dès le début du cisaillement, l'entrefer devient intégralement turbide. Le maximum d'intensité diffusée est atteint à 0,6 s. Entre 1,6 et 3 s, les bandes se forment avec une interface diffuse. Cette interface migre vers le rotor en s'affinant. À partir de 7 s, l'interface est fine et continue de migrer vers le rotor jusqu'à sa position d'équilibre. Nous détaillerons cette étape au chapitre suivant. L'interface commence sa déstabilisation suivant la vorticité à 33,2 s. L'amplitude du motif ondulé va croître jusqu'à 65 s.



FIGURE 3.3 – Observation de l'entrefer avec la *configuration 1*. On impose $\dot{\gamma}$ =30 s⁻¹ à t=0 s. Le rotor se situe sur la gauche des images et le stator à droite. Les images sont prises à la fréquence de 5 par seconde.

Pour étudier l'évolution de l'interface, nous contruisons des diagrammes spatiotemporels de la position de l'interface dans l'entrefer. À l'aide d'un programme de détection de l'interface, nous encodons la position de l'interface dans l'entrefer en niveaux de gris. Le blanc correspond aux maxima de l'interface (proche du stator) et le noir aux minima (proche du rotor). Le schéma 3.4 illustre le traitement d'une image. Les profils I(z) sont regroupés dans le diagramme spatiotemporel I(z,t).



FIGURE 3.4 – Représentation schématique de la construction d'un diagramme spatiotemporel. Un programme détecte sur chaque image la position de l'interface dans l'entrefer. Le noir correspond aux zones proches du rotor, le blanc aux zones proches du stator.

Nous avons observé sur la gamme de cisaillement du plateau, trois comportements distincts de l'interface. La figure 3.5 montre trois diagrammes spatiotemporels caractéristiques de ces comportements pour différents cisaillements imposés : (a) 7 s^{-1} , (b) 40 s^{-1} et (c) 70 s^{-1} . La hauteur d'observation dans l'entrefer est en ordonnée et le temps en abscisse. Les caractéristiques du motif de l'interface variant avec le cisaillement, l'échelle spatiale est choisie pour avoir une bonne résolution du motif. Au début de chaque diagramme spatiotemporel, nous avons la période transitoire durant laquelle l'interface se forme et migre vers sa position d'équilibre en direction du rotor. La déstabilisation de l'interface s'installe par la suite et confère à celle-ci un motif ondulé.



FIGURE 3.5 – Diagrammes spatiotemporels de CTAB/NaNO₃ à 28°C pour un cisaillement de : (a) 7 s⁻¹, (b) 40 s⁻¹ et (c) 70 s⁻¹. La position de l'interface dans l'entrefer est donnée en niveaux de gris. Le blanc correspond à la position de l'interface proche du rotor, tandis que le noir correspond à celle proche du stator. On distingue trois comportements de l'interface dépendant du cisaillement.



FIGURE 3.6 – À gauche : diagramme spatiotemporel extrait de celui à 40 s⁻¹ montrant l'oscillation des minima de l'interface. Au centre : intensité lumineuse diffusée au niveau d'un minimum de l'interface à $z_0 \approx 2$ cm en fonction du temps. À droite : évolution de la période d'oscillation des minima (•) et la période de rotation du cylindre intérieur (\blacktriangle) avec le cisaillement. Les barres d'erreur sont évaluées sur 30 périodes et sont plus petites que les symboles. Cette période ne varie pas avec $\dot{\gamma}$.

Sur le diagramme spatiotemporel (a), le cisaillement imposé est de 7 s⁻¹. La période transitoire dure 20 secondes après lesquelles l'interface se déstabilise et un motif de l'interface apparaît. Sa longueur d'onde est de 0,5 mm et son amplitude de 30 μ m. Ce motif oscille suivant la hauteur de la cellule avec une période T=15,5±0,9 s décorrélée de celle du rotor, ici 11 s. De plus, certains maxima se déplacent vers le haut ou le bas de la cellule avec une vitesse de phase moyenne de $20\pm3 \ \mu m.s^{-1}$, ce qui est deux ordres plus faible que la vitesse tangentielle. Ce genre de comportement a été observé dans la gamme de cisaillement $\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} \leq 10 \ s^{-1}$. Néanmoins, juste au-dessus de $\dot{\gamma}_1$ la proportion de phase induite est trop réduite pour être détectable avec la résolution de notre caméra.

Le diagramme spatiotemporel (b) présente le comportement de l'interface pour un cisaillement imposé de 40 s⁻¹. Après une période transitoire de soixante secondes, un motif stationnaire de longueur d'onde constante dans le temps s'installe. Des observations aux temps longs ne montrent aucun changement de longueur d'onde. Elle est de 3,6 mm et l'amplitude de 130 μ m. Les minima de l'interface présentent une évolution temporelle sous la forme d'oscillations régulières, de période $\tau \simeq 5s$. Ces oscillations apparaissent dans le régime permanent pour 10 s⁻¹ $\leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_+$, et se manifestent de manière transitoire pour $\dot{\gamma}_+ \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2$. La figure 3.6 montree l'évolution de la période caractéristique de ces oscillations avec le cisaillement. Les oscillations des minima sont décorrélées de la période de rotation du cylindre. Cela prouve que ce phénomène d'oscillations des minima est indépendant de la non-coaxialité du rotor (l'axe du cylindre intérieur est parallèle et non-confondu avec l'axe de rotation ; la mesure du défaut de coaxialité avec un palpeur donne une valeur de $10 \pm 2\mu$ m en haut et en bas du cylindre) ; il est donc intrinsèque au système. Nous reviendrons sur ce phénomène à la section 3.3.1.

Le diagramme (c), pour un cisaillement de 70 s⁻¹, montre l'interface évoluer continuellement sur 1h30 : des nucléations et fusions de minima se produisent tout au long de l'expérience sans interruption. Entre 1800 et 3000 s, deux minima fusionnent systématiquement avec leur voisin inférieur immédiat et semblent ainsi se mouvoir vers le bas de la cellule. Ce phénomène ne révèle pas une translation du motif vers le bas de la cellule, car d'autres expériences nous montrent que le phénomène inverse peut se produire et que les deux peuvent cohabiter. Si l'amplitude du motif reste à peu près constante, la longueur d'onde quant à elle varie de 2,4 à 3,5 mm. Les minima de l'interface oscillent de manière transitoire, immédiatement après la fusion de deux minima. La figure 3.7 résume les différents comportements de l'interface sur le plateau présentés ci-dessus.

Sur la figure 3.8 sont représentées les évolutions de l'amplitude et de la longueur d'onde du motif en fonction de $\dot{\gamma}$. L'amplitude passe par un maximum aux alentours de 45 s⁻¹, lorsque la phase induite occupe la moitié de l'entrefer, tandis que la longueur d'onde ne cesse de croître jusqu'à 60 s⁻¹ pour atteindre 4,7 mm.



FIGURE 3.7 – Représentation des différents comportements de l'interface entre les bandes de cisaillement sur le plateau de CTAB/NaNO₃. La région (b), s'étendant de 10 s⁻¹ à $\dot{\gamma}_+=56\pm3$ s⁻¹, présente un motif stable spatialement. Les régions (a) et (c), s'étendant respectivement de $\dot{\gamma}_1=4,8\pm0,6$ s⁻¹ à 10 s⁻¹, et de $\dot{\gamma}_+=56\pm3$ s⁻¹ à $\dot{\gamma}_2=92\pm5$ s⁻¹, présentent des motifs instables spatialement.



FIGURE 3.8 – À gauche : amplitude du motif en fonction du cisaillement. À droite : longueur d'onde en fonction du cisaillement. Au-delà de 60 s⁻¹, la longueur d'onde motif de l'interface évolue avec le temps à l'état stationnaire.

3.1.2.2 Signature mécanique de l'instabilité

La figure 3.9 présente l'évolution de la contrainte en fonction du temps en réponse à un cisaillement imposé de 30 s⁻¹. Elle correspond à la série de photographies prises simultanément et présentée précédemment (figure 3.3). La contrainte est mesurée avec un échantillonnage temporel de 0,06 s. Elle est constituée, d'un pic en contrainte, appelé overshoot dont l'amplitude dépend du cisaillement, suivi d'une relaxation vers une valeur apparemment stable en exponentielle étirée ou en oscillations amorties selon le cisaillement (figure 3.9 gauche). Ce transitoire se termine par un petit minimum en contrainte, appelé undershoot avant d'atteindre l'état stationnaire. Sur la figure 3.9 droite, nous avons mis en évidence l'undershoot. Les petites oscillations observées sur cette réponse sont corrélées à la vitesse de rotation et dues à l'imperfection de la coaxialité du rotor (de l'ordre de 5 à 10 μ m). Il est important de noter que la fréquence du rotor se retrouve dans toutes les réponses en cisaillement et qu'elle est présente dans les diagrammes spatiotemporels pour $\dot{\gamma} < 20 \text{ s}^{-1}$, au-delà, elle devient plus difficile à détecter. Ceci s'explique par les observations optiques de l'interface dans l'entrefer. En effet, pour $\dot{\gamma} < 20 \text{ s}^{-1}$, on observe que l'interface suit le déplacement radial du rotor dû à la non-coaxialité sur toute la hauteur de la cellule. En revanche, au-dessus de 20 s⁻¹, l'interface ne parvient plus à suivre le mouvement radial du rotor : le déplacement radial de l'interface est « en retard » sur celui du rotor. Cet effet augmentant avec le cisaillement, la fréquence du rotor n'est plus visible dans les diagrammes spatiotemporels aux hauts cisaillements.

Cette réponse temporelle transitoire est caractéristique de la transition vers un état en bandes de cisaillement [8]. En effet, ce type de réponse transitoire en contrainte a été observé dans de nombreux systèmes de micelles [1, 62, 95, 102, 103]. Elle a été modélisée par une exponentielle décroissante étirée, et interprété par Berret *et al.* [1, 87] comme la formation et la croissance d'une phase contenant des éléments fortement orientés (phase nématique). Cette réponse est généralement suivie d'un *undershoot* dans les systèmes semi-dilués [1, 4, 62, 82, 94, 95].

Les données optiques nous ont permis de déterminer le temps à partir duquel l'interface migre (t=7 s) et le temps à partir duquel elle se déstabilise (t=30 s). Dans l'*undershoot* (fig. 3.9 droite), la contrainte présente une inflexion à t=30 s, qui est corrélée au début de la déstabilisation de l'interface. Cette inflexion est clairement identifiable de manière systématique au centre du

plateau (10 s⁻¹ $\leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_+$); en dehors de cette région, elle est plus difficile à repérer. Nous avons choisi de considérer ces deux évolutions séparément, comme correspondant à deux étapes observées en optique. Avant ce temps, nous avons ajusté la contrainte avec une croissance linéaire et après ce temps en mono-exponentielle.



FIGURE 3.9 – Réponse en contrainte à un taux de cisaillement de 30 s⁻¹ imposé à t = 0 s. À droite, nous avons agrandi la région de l'*undershoot* correspondant au démarrage de l'instabilité.



FIGURE 3.10 – Corrélation des temps d'inflexion extraits de la réponse en contrainte τ_1 (•) et de début de déstabilisation de l'interface τ_2 (•) [4].

La croissance linéaire de la réponse en contrainte est associée avec la migration d'une interface fine vers le rotor, tandis que la croissance monoexponentielle vers l'état stationnaire est associée à la déstabilisation de l'interface. Ce type de comportement rhéologique est caractéristique de la migration de l'interface vers sa position d'équilibre puis de sa déstabilisation [4, 82]. Il est observé pour les cisaillements compris entre $\dot{\gamma}_1$ et 50 s⁻¹. Le temps de déstabilisation observé en optique et le temps du changement de pente de la contrainte sont corrélés dans cette gamme de cisaillements, comme le montre la figure 3.10. Le temps de déstabilisation augmente avec le cisaillement. Aux petits cisaillements ($\dot{\gamma} \leq 7 \text{ s}^{-1}$), on observe une divergence du temps extrait de la réponse en contrainte (τ_1) due à l'existence d'états métastables [82]. Au-delà de cette gamme de cisaillements, l'inflexion entre la croissance linéaire et la mono-exponentielle n'est plus visible. Dans la région $\dot{\gamma} \geq \dot{\gamma}_+$, le plateau change de pente et la dynamique change. Le bruit dans la réponse en contrainte passe de l'ordre de 0,01% à 0,5% dans cette région (figure 3.11).



FIGURE 3.11 – Réponse en contrainte à un taux de cisaillement imposé de 20 s⁻¹ (à gauche) et 70 s⁻¹ (à droite). Le bruit dans la contrainte augmente avec le cisaillement.

Cette relaxation de la contrainte, composée d'un overshoot suivi d'un petit undershoot, est caractéristique du système CTAB/NaNO₃ dans la région $\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_+$. La lente croissance vers l'état stationnaire durant cet undershoot constitue la signature mécanique de l'instabilité.

De tels undershoot ont été observés dans de nombreux systèmes micellaires, comme CTAB/NaNO₃ [4,62,82,94,95], CTAB/NaSal [102,104], CPCl/NaSal [1,3,90,105] et CTAT [106]. Il se rencontre également dans d'autres systèmes, comme les polymères téléchéliques sphériques [13] et vermiculaires [12]. L'undershoot n'a été que peu étudié jusqu'à présent, cependant il pourrait révéler un comportement et une instabilité commune à ces systèmes complexes. Nous reviendrons sur cette signature dans la section Le système CPCl/NaSal.

Des simulations numériques basées sur le modèle diffusif de Johnson-Segalman (dJS), réalisées par Fielding [43,107–109] ont montré un *undershoot* dans la réponse en contrainte transitoire (figure 3.12), durant lequel l'instabilité de l'interface se développe. Ces simulations sont compatibles avec les observations expérimentales. Néanmoins, elles ne permettent pas de mettre en évidence un changement de comportement dans l'*undershoot*.



FIGURE 3.12 – Simulation numérique, basée sur le modèle diffusif de Johnson-Segalman, de la réponse en contrainte (T_{xy}) à un taux de cisaillement imposé d'un système viscoélastique en bandes de cisaillement. La réponse transitoire présente un *undershoot* caractéristique du développement de l'instabilité de l'interface, observé expérimentalement lors du développement de l'instabilité. Figure empruntée à la référence [109].

3.1.2.3 Influence de la géométrie

Dans cette section, nous testons l'influence des paramètres géométriques de la cellule expérimentale sur la signature mécanique, ainsi que sur l'état stationnaire de l'instabilité. Ces paramètres sont la hauteur et le rayon intérieur de la cellule. La variation du rayon intérieur modifie à la fois la courbure et l'entrefer.

3.1.2.3.1 Variation de la hauteur Les résultats précédents ont été obtenus sur une cellule de hauteur 4 cm et de 13,33 mm de rayon intérieur. Ces valeurs seront prises en référence sous la dénomination respective H4 et R13,33. Dans ce qui suit, nous avons utilisé 4 hauteurs différentes, respectivement 1, 2, 3 et 4 cm. En faisant varier la hauteur, nous testons l'influence des conditions aux bords et l'influence de la hauteur de fluide cisaillé sur l'instabilité. La figure 3.13 montre l'évolution de la proportion de la phase induite en fonction du cisaillement pour toutes les hauteurs utilisées. La ligne droite représente la règle du levier. Nous constatons qu'indépendamment de la hauteur, la proportion de phase induite semble en première approximation évoluer selon cette règle.

Si la proportion de phase induite ne change pas, le motif quant à lui va quelque peu différer selon les hauteurs. La figure 3.14 présente l'ensemble des amplitudes et longueurs d'onde obtenues sur le plateau pour les différentes hauteurs utilisées. À l'exception de H1, les amplitudes sont les mêmes aux incertitudes près. À la plus petite hauteur de cellule, les amplitudes sont légèrement plus grandes, ceci en raison des effets de bords. En effet, aux bords supérieur et inférieur de la cellule, l'épaisseur de la phase turbide est plus faible. Cette déformation (« pincement ») de la phase turbide aux bords est responsable de l'augmentation de l'amplitude du profil de l'interface mesurée pour $\dot{\gamma} > 20 \text{ s}^{-1}$. Sur H1, les bords sont très proches et leur influence est importante sur l'interface. Les longueurs d'onde de H3 et H4 sont les mêmes. En revanche, H1 et H2 diffèrent. Pour H2 et H3, la longueur d'onde du motif cesse de croître pour $\dot{\gamma} = 35 \text{ s}^{-1}$ où elle atteint une valeur plateau de 4,1 mm. De même, H1 présente une valeur maximum de la longueur d'onde pour $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$ où elle atteint 3 mm. En effet, à 25 s⁻¹, le motif possède trois longueurs d'onde de 3 mm, soit 0,9 cm de hauteur autrement dit toute la hauteur disponible. La hauteur limite les longueurs d'ondes accessibles par le système. Au-delà de 70 s⁻¹, l'interface est trop proche du stator, empêchant la mesure de la proportion de phase induite, et son amplitude devient trop faible pour être mesurée.



FIGURE 3.13 - Règle du levier pour CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3(0,405 \text{ M})$ à 28°C et les quatre hauteurs de cellule : 1, 2, 3 et 4 cm.



FIGURE 3.14 – Évolution de l'amplitude (à gauche) et de la longueur d'onde (à droite) du motif avec le cisaillement pour les quatre hauteurs testées.



FIGURE 3.15 – Diagrammes spatiotemporels pour une cellule de 1 cm de hauteur et de 1,13mm d'entrefer. (a) 25 s⁻¹, (b) 30 s⁻¹, (c) 45 s⁻¹, (d) 50 s⁻¹. Les points noirs espacés régulièrement correspondent au passage d'une bulle d'air dans le champ d'observation.

Sur la hauteur H1, pour un cisaillement de 30 s^{-1} , nous observons un motif assymétrique (figure 3.15 diagramme (b)) : les deux maxima n'ont pas la même largeur. Le motif ne parvient pas à adapter sa longueur d'onde à la hauteur libre qui s'offre à lui. De plus, les effets de bord limitent la hauteur disponible. Au voisinage des bords supérieur et inférieur l'interface est déformée et l'écoulement est perturbé. À partir de 45 s⁻¹, le motif ne possède plus de longueur d'onde à la hauteur disponible. La hauteur de la cellule influe donc sur la longueur d'onde qu'elle limite,

mais aussi sur la dynamique, en rendant le motif non-stationnaire à des valeurs de cisaillement plus basses. La hauteur joue également sur la vitesse de déstabilisation de l'interface. Les temps de déstabilisation de l'interface sont ici de l'ordre de 10 à 15 secondes, alors qu'ils étaient de 25 à 35 secondes pour la hauteur de 4 cm. L'interface se déstabilise dans un premier temps au niveau des bords ; autrement dit, les effets de bords déstabilisent l'interface de façon précoce.

La figure 3.16 montre les réponses en contrainte obtenues respectivement pour les hauteurs H1, H2 et H3. La signature mécanique est visible en début de plateau sur H2 et H3, où le temps de déstabilisation délimite la croissance linéaire, de la croissance monoexponentielle de la contrainte (fig. 3.16 (b,d)). Sur H1, le bruit empêche de l'observer clairement, néanmoins l'*undershoot* est présent et la contrainte relaxe lentement vers l'état stationnaire, comme nous l'avons observé sur les autres hauteurs. D'une manière générale, plus la hauteur diminue et plus le bruit dans la réponse est important et apparaît à de faibles cisaillements. L'amplitude du bruit peut atteindre jusqu'à 5% de la valeur de la contrainte pour H2 et H3 et 10% pour H1.



FIGURE 3.16 – Réponses en contrainte : (a) à $\dot{\gamma}=20 \text{ s}^{-1}$ avec une hauteur de cellule de 1 cm, (b,c) à $\dot{\gamma}=10$ et 50 s⁻¹ avec une hauteur de cellule de 2 cm et (d,e) à $\dot{\gamma}=15$ et 40 s⁻¹ avec une hauteur de cellule de 3 cm.

De toutes les géométries, celle de hauteur 4 cm permet de limiter les effets perturbants des bords supérieurs et inférieurs, afin d'accéder à tous les régimes sur le plateau. Nous utiliserons la hauteur de 4 cm par la suite.

La variation de la hauteur a montré que la signature mécanique est présente indépendamment de la hauteur sous la forme d'un *undershoot*. Lorsque le bruit est faible, on observe que cet *undershoot* est composé d'une croissance linéaire (qui finit par être masquée par le bruit aux cisaillements élevés) et d'une monoexponentielle. Elle a permis de mettre en évidence l'effet limitant de la perturbation de l'écoulement au niveau des bords inférieurs et supérieurs de la cellule à l'origine du bruit dans la réponse en contrainte. La hauteur limite également la longueur d'onde maximum accessible.

3.1.2.3.2 Variation du rayon intérieur Dans ce qui suit, nous ne changeons que le rayon intérieur, la hauteur de la cellule restera de 4 cm. En changeant le rayon intérieur, on fait varier la taille de l'entrefer mais aussi la courbure. Les nouveaux rayons sont $R_1=12,46$ et 11,96 mm correspondant respectivement à un entrefer de 2 et 2,5 mm. La courbure va influer sur la force élastique par unité de volume qui s'exprime $F_{\rm el} = \frac{N_1(\dot{\gamma})}{R}$, avec R le rayon de courbure. La variation de courbure va influer sur le seuil de l'instabilité élastique. Si l'on compare le terme $\sqrt{\frac{e}{R_1}}$ de l'équation 1.14 avec les deux rayons, on obtient 0,4 pour $R_1=12,46$ mm et 0,45 pour $R_1=11,96$ mm. Le seuil de l'instabilité élastique est abaissé dans le cas du rayon intérieur le plus petit.

La figure 3.17 montre la proportion occupée par la phase induite pour les différents rayons. Le trait plein matérialise la règle du levier pour l'échantillon avec le rayon intérieur de 13,33 mm. La proportion pour le rayon de 11,96 mm s'écarte de cette règle. Nous n'avons cependant pas pu déterminer $\dot{\gamma}_2$ pour R12,46 et R11,96, l'écoulement étant très perturbé par l'effet *Weissenberg*.

En explorant le plateau avec les différents rayons, nous avons pu constater que dans le régime stationnaire l'amplitude des motifs ne varie pas avec le rayon (figure 3.18 de gauche). En revanche, la longueur d'onde des motifs dépend fortement du rayon intérieur et de l'entrefer. La figure 3.18 droite présente l'évolution de la longueur d'onde normalisée par la taille de l'entrefer en fonction du cisaillement. Avec le rayon R12,46 la longueur d'onde normalisée du motif dépasse à partir de 15 s⁻¹ celle de R13,33. La longueur d'onde atteint son maximum à 25 s⁻¹ ($\lambda_{max} = 5$ mm). Il en est de même pour R11,96 où la longueur d'onde atteint 7,44 mm à 35 s⁻¹ soit près du double de la longueur d'onde atteinte dans la situation où le rayon intérieur est de 13,33 mm.



FIGURE 3.17 – Proportion occupée dans l'entrefer par la phase turbide en fonction du taux de cisaillement pour les trois rayons intérieurs, respectivement 13,33 mm, 12,46 mm et 11,96 mm.



FIGURE 3.18 – À gauche : amplitude du motif en fonction du taux de cisaillement. À droite : longueur d'onde du motif normalisée par la taille de l'entrefer en fonction du taux de cisaillement pour trois rayons intérieurs, respectivement 13,33 mm, 12,46 mm et 11,96 mm.

Un plus petit rayon intérieur et un plus grand entrefer permettent donc d'atteindre des longueurs d'onde du motif plus grandes. Les cisaillements accessibles avec R12,46 sont inférieurs à ceux de la géométrie R13,33; dès 45 s^{-1} , l'échantillon est perturbé par l'effet *Weissenberg*, rendant inaccessible la fin du plateau et la seconde branche. En effet, la remontée du fluide le long de l'axe tournant injecte des bulles d'air dans l'échantillon qui vont avoir tendance à se fractionner et descendre dans l'échantillon vers le bas de la cellule, empêchant toute mesure. Avec la géométrie R11,96, l'effet est encore plus important. Ceci est vraisemblablement dû à l'augmentation de la courbure entre les trois rayons, ayant pour effet d'augmenter la force élastique centripète locale au rotor. Cela pourrait expliquer pourquoi le fluide remonte le long du rotor pour des cisaillements plus faibles à mesure que l'on diminue le rayon intérieur.



FIGURE 3.19 – Évolution de la période des oscillations des minima de l'interface en fonction de $\dot{\gamma}$ pour les géométries de hauteur variable, sur la figure de gauche, et pour les différents rayons intérieurs, sur la figure de droite. Si la période des oscillations ne semble pas influencée par la hauteur, en revanche, sa dépendance avec le rayon intérieur apparaît très clairement. Les barres d'erreur sont évaluées sur 30 périodes d'oscillation et sont plus petites que les symboles.

3.1. Un système « modèle » : CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M)

Nous avons vu précédemment que les minima de l'interface oscillent à une période de 5 s et cela, indépendammant du cisaillement. La figure 3.19 présente la période d'oscillation des minima pour les différentes hauteurs (à gauche) et les différents rayons intérieurs (à droite) en fonction du cisaillement. Nous constatons que la hauteur n'a pas d'influence sur la période d'oscillation. En revanche, la dépendance avec le rayon intérieur et l'entrefer semble forte. La période des oscillations passe d'environ 5 s pour R13,33 à 4 s pour R12,46 et R11,96. La dynamique des oscillations semble plus rapide lorsqu'on augmente la courbure et l'entrefer. Pour des raisons inhérentes au dispositif expérimental, il ne nous a pas été possible de varier le rayon intérieur à entrefer constant. Cela constitue une limitation importante, car nous ne sommes pas en mesure d'affirmer si la courbure et/ou l'entrefer est responsable de l'augmentation de la longueur d'onde du motif de l'interface et de la dynamique accélérée de l'oscillation des minima.

3.1.2.4 Influence du paramètre de contrôle : contrainte imposée

Qu'advient-il de l'instabilité lorsqu'on change le paramètre de contrôle? Dans cette section, nous imposons la contrainte tangentielle au système. La figure 3.20 montre une série d'images de l'entrefer pour une contrainte de 164 Pa, correspondant à un cisaillement de 38 s⁻¹. Avant le début du cisaillement, l'échantillon ne diffuse pas la lumière. Dès le début du cisaillement, une petite bande turbide apparaît proche du rotor. Elle croît et s'affine en migrant vers le stator. Puis, l'interface se déstabilise à partir de 30 s en développant ses maxima vers le stator. Le motif de l'interface va poursuivre son développement jusqu'à 70,8 s. Au-delà, le profil de l'interface est stationnaire.



FIGURE 3.20 – Observation de l'entrefer avec l'éclairage laser. À t = 0 s, on impose la contrainte, σ = 164 Pa correspondant à un cisaillement stationnaire de 38 s⁻¹. Le rotor se situe sur la gauche des images et le stator à droite.

Après avoir balayé en contrainte le plateau, nous remarquons plusieurs différences par rapport aux expériences à cisaillement imposé. Les temps de déstabilisation sont plus grands à contrainte imposée qu'à cisaillement imposé. La déstabilisation se produit plus tôt, durant un intervalle de temps plus long. De plus, elle se produit pendant que l'interface continue de migrer. La dynamique de l'interface est fortement affectée par le paramètre de contrôle. La figure 3.21 présente les réponses en cisaillement, pour différentes contraintes imposées sur le plateau. En régime de fluage, les réponses temporelles en cisaillement ne présentent pas d'overshoot et l'entrefer ne devient pas turbide dans les premières secondes comme c'était le cas à cisaillement imposé. Rappelons que nous avons vu au début de ce chapitre qu'à cisaillement imposé, l'overshoot dans la réponse en contrainte est associé à un entrefer complètement turbide. De manière générale, la réponse en cisaillement présente une croissance rapide, suivi d'un changement de comportement associé à une croissance linéaire du cisaillement, puis d'une relaxation lente vers l'état stationnaire en monoexponentielle. De la même façon qu'à cisaillement imposé, nous avons corrélé les temps de d'inflexion de la réponse en cisaillement et de déstabilisation de l'interface (figure 3.22). Contrairement aux expériences à cisaillement imposé, le temps de déstabilisation de l'interface semble constant avec la contrainte.



FIGURE 3.21 – À gauche : réponses en cisaillement sur le plateau. À droite : Signature mécanique de l'instabilité pour σ =161,4 Pa. Ajustement de la croissance linéaire en rouge. Ajustement monoexponentiel en bleu.



FIGURE 3.22 – Corrélation des temps relevés dans la réponse en cisaillement τ_1 (•) et de début de déstabilisation de l'interface τ_2 (•) en fonction de la contrainte imposée.

Les figures 3.23 montrent les différences entre les paramètres d'ajustement à cisaillement imposé (à gauche) et à contrainte imposée (à droite). À partir de ces ajustements, on extrait la pente de la croissance linéaire et le temps caractéristique de la mono-exponentielle (figure 3.23). Les pentes de la croissance et les temps caractéristiques de déstabilisation sont plus importants à contrainte imposée. Les pentes sont de 0,03 à 0,08 à $\dot{\gamma}$ imposé et de 0,05 à 0,25 à σ imposée. Les temps caractéristiques de déstabilisation extraits des ajustements sont de l'ordre de 10 à 15 s à $\dot{\gamma}$ imposé et de 10 à 30 s à σ imposée. De plus, ces paramètres ont des évolutions différentes selon le paramètre de contrôle. Bien que la dynamique transitoire soit affectée par le paramètre de contrôle, la signature mécanique de l'instabilité est repérable dans la réponse en cisaillement.



FIGURE 3.23 – Pentes (\blacktriangle) et temps caractéristiques de la déstabilisation (\bullet) extrait de la réponse en contrainte à cisaillement imposé (à gauche) et de la réponse en cisaillement à contrainte imposée (à droite). Les paramètres d'ajustement caractérisant la signature mécanique présentent une grande sensibilité au paramètre de contrôle.



FIGURE 3.24 – Diagrammes spatiotemporels de CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) à 28°C à contrainte imposée. La durée des expériences est de 10 minutes. Les contraintes imposées sont : (a) 145,5 Pa, (b) 155,2 Pa, (c) 161,4 Pa et (d) 172,6 Pa. (a), (b) et (c) sont dans le régime de comportement 3.7 (b), et (d) dans le régime 3.7 (c).

Si la dynamique transitoire de l'interface est différente, le comportement aux temps longs ne semble pas affecté. La figure 3.24 présente différents diagrammes spatiotemporels obtenus sur le plateau à contrainte imposée.

Les comportements spatiotemporels 3.24 (a,b,c) correspondant respectivement à des cisaille-

ments mesurés de 10, 20 et 35 s⁻¹ sont caractéristiques du comportement 3.7 (b) observé pour $10 \leq \dot{\gamma} \leq 56 \text{ s}^{-1}$ à cisaillement imposé. Dans ce régime la longueur d'onde tend vers une valeur fixe et les minima de l'interface oscillent de manière permanente. Aux temps longs, les minima oscillent de la même manière qu'à cisaillement imposé. La période d'oscillation des minima de l'interface (figure 3.26) est identique à celle observée à cisaillement imposé. Elle est également indépendante de la sollicitation. Le paramètre de contrôle n'a pas d'influence sur ce phénomène. Il n'a d'influence que sur la dynamique transitoire.

Le diagramme 3.24 (d) correspond à un cisaillement mesuré de 65 s⁻¹ et son comportement est typique de 3.7 (c) observé pour $\dot{\gamma} \ge 56 \text{ s}^{-1}$ à cisaillement imposé. Dans ce régime, des nucléations et fusions de minima interviennent de manière permanente. Sur les figures 3.25, nous comparons les amplitudes et longueurs d'onde mesurées à l'état stationnaire. Les longueurs d'onde et les amplitudes sont identiques à $\dot{\gamma}$ et σ imposée.

À partir de ces résultats, nous pouvons conclure que le paramètre de contrôle influence la dynamique transitoire du système. En effet, les observations optiques à contrainte imposée ont montré, durant la période transitoire, une croissance de la phase induite, se traduisant par une migration de l'interface vers le stator. De plus, la déstabilisation de l'interface se produit durant la phase de migration et est radicalement différente du comportement transitoire à cisaillement imposé. En revanche, le paramètre de contrôle ne modifie en rien l'état stationnaire.



FIGURE $3.25 - \text{\AA}$ gauche : longueur d'onde asymptotique du motif en fonction de la contrainte imposée. À droite : amplitude du motif en fonction de la contrainte imposée.



FIGURE 3.26 – Évolution de la période d'oscillation des minima de l'interface à contraintes imposées et cisaillements imposés. Les barres d'erreur sont évaluées sur 30 périodes.

3.2 Une instabilité « générique » ?

3.2.1 Le système CPCl/NaSal

Dans cette section, nous nous intéressons à différentes concentrations de chlorure de cetylpyridinium (CPCl) et de salicylate de sodium (NaSal) dans de l'eau salée à 0,5 M de chlorure de sodium.

La figure 3.27 montre les réponses en contrainte obtenues sur le plateau de CPCl/NaSal 6.3, 8, 10 et 12% à T= $22\pm0,1$ °C.



FIGURE 3.27 – Réponses en contrainte : (a) de 6,3% à 12 s⁻¹, (b) de 8% à 10 s⁻¹, (c) de 10% à 7 s⁻¹ et (d) de 12% à 6 s⁻¹. Le temps d'acquisition est de 0,06 s par point.

Ces réponses en contrainte présentent à temps court un *overshoot* éventuellement suivi d'oscillations amorties. Le CPCl/NaSal présente le comportement standard défini dans [87]. Comme dans le cas de CTAB/NaNO₃, le transitoire est prolongé par un *undershoot* dont l'amplitude augmente avec la concentration massique totale. Ces amplitudes sont respectivement de 0.5, 1.5, 4 et 6 Pa. Sur les figures 3.27 (b) et (c), nous distinguons une inflexion dans la contrainte survenant au début de la déstabilisation de l'interface. Cependant, cette corrélation n'est plus possible en fin de plateau. En effet, la réponse en contrainte est davantage masquée par le bruit, comme nous l'avons remarqué sur le système CTAB/NaNO₃. La réponse devient difficile à analyser. Les concentrations de 6,3 et 12%, figures 3.27 (a) et (d), illustrent la complexité de l'évolution temporelle de la contrainte durant la relaxation.

Ces quatre systèmes présentent un comportement en optique plus complexe que celui observé sur le système CTAB/NaNO₃. L'intensité de lumière diffusée par la phase induite augmente avec la concentration totale, et est plus importante que sur CTAB (la différence d'intensité est d'environ un facteur 2 entre CTAB/NaNO₃ et CPCl/NaSal 10%). La figure 3.28 montre une série d'images prises durant la période transitoire pour le 8% cisaillé à 10 s⁻¹. Elle illustre le comportement commun des CPCl/NaSal ainsi que leur complexité. Ainsi, nous retrouvons la migration de l'interface vers sa position d'équilibre et la déstabilisation de celle-ci, corrélées respectivement à la croissance linéaire, puis à la croissance monoexponentielle de la réponse en contrainte. La déstabilisation de l'interface se produit invariablement et pour tous les échantillons durant l'*undershoot* en contrainte, pendant la relaxation vers l'état stationnaire.

La complexité de la réponse est illustrée sur la figure 3.28. Au début du cisaillement (t<1 s), la turbidité de l'échantillon est homogène, tandis que sur les images de 1 à 8,6 s, elle devient fortement inhomogène avant même l'apparition des bandes de cisaillement. Une zone non-turbide apparaît localement. Ce comportement est caractéristique du système CPCl/NaSal à différentes concentrations.



FIGURE 3.28 – Série de photographies de l'entrefer prises sur CPCl/NaSal 8% à 22°C à un cisaillement imposé est de 10 s⁻¹. Avant l'apparition des bandes de cisaillement, la turbidité est fortement inhomogène dans l'entrefer.



FIGURE 3.29 – Photographies de l'entrefer sur CPCl/NaSal 6,3% à 14 s⁻¹, 8% à 12 s⁻¹, 10% à 10 s⁻¹, 12% à 8 s⁻¹ et 14% à 10 s⁻¹ à 22°C. Ce dernier présente une structure filamentaire très fluctuante. La largeur de chaque image correspond à la largeur de l'entrefer (1,13 mm).

3.2. Une instabilité « générique » ?

Aux temps longs, tous les systèmes présentent une interface ondulée avec une dynamique très lente (figure 3.29). Les 8, 10 et 12% présentent un motif d'allure similaire au CTAB. En revanche, le motif de l'interface est difficile à étudier pour 6,3%, car il est de très faible amplitude. Le 14% montre une structure complexe.

Le CPCl/NaSal 10% présente un exemple de comportements spatiotemporels complexes rencontrés. Les diagrammes spatiotemporels (a,b,c,d) de la figure 3.30 illustrent les quatre comportements typiques observés sur le plateau.

Les diagrammes 3.30 (a) et (b) montrent l'évolution du profil de l'interface au cours du temps : les maxima se déplacent, nucléent et disparaissent. Le diagramme 3.30 (b) montre l'oscillation de l'interface au niveau des minima.



FIGURE 3.30 – Diagrammes spatiotemporels de l'interface pour CPCl/NaSal 10% à 22°C. (a) 3 s⁻¹, (b) 6 s⁻¹, (c) 10 s⁻¹, (d) 16 s⁻¹, (e) 18 s⁻¹ et (f) 20 s⁻¹. À partir de 16 s⁻¹, des évènements perturbateurs provenant des bords supérieur et inférieur de la cellule viennent déstructurer l'écoulement.
Sur le diagramme 3.30 (c), un motif de longueur d'onde constante dans le temps se développe avec des oscillations assez complexes des minima. La période d'oscillation d'environ une vingtaine de secondes est à rapprocher des fluctuations dans le profil de vitesse obtenu sur ce système à 25°C dans [110] où les auteurs observent des fluctuations régulières du profil de vitesse également de l'ordre de 20 s. Bien que les températures soient différentes dans les deux cas, ce genre de fluctuations dans le plan vorticité - gradient de vitesse pourraient expliquer les fluctuations observées dans le profil de vitesse. En observant de plus près un minimum, nous constatons qu'il y a un déphasage d'une demie-période entre la partie supérieure proche d'un maximum et la partie inférieure proche de l'autre maximum.

Le diagramme 3.30 (d) montre un motif ondulé perturbé par des événements passagers qui semblent déstructurer l'écoulement. La figure 3.31 présente deux images de l'entrefer lors de l'arrivée d'un de ces évènements. Ces perturbations des bandes naissent aux bords supérieur et inférieur du cylindre. Elles se propagent vers le bas lorsqu'elles naissent en haut du cylindre et inversement. Elles ne naissent jamais à mi-hauteur du cylindre. Lors de leur passage, nous observons une importante augmentation de la contrainte, conjointement à la désorganisation apparente de l'écoulement, ce qui rappelle la turbulence élastique [98] (décrit en début de chapitre). Ces phénomènes « turbulents » se produisent pour $\dot{\gamma}_+ \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2$, et sont de plus en plus fréquents à mesure que le cisaillement se rapproche de $\dot{\gamma}_2$ (diagrammes 3.30 (d,e,f)). La contrainte augmente brutalement lors du passage d'un événement, de l'ordre de 20% environ, comme le montre la réponse en contrainte à un cisaillement de 20 s⁻¹, figure 3.32. Chaque « pic » en contrainte correspond au passage d'un évènement perturbateur (photographie 3.31 (b)).



FIGURE 3.31 – Photographies de CPCl/NaSal 10% à 16 s⁻¹ lors du passage d'un évènement pertubateur. (a) l'évènement arrive et perturbe l'interface. (b) l'évènement est installé dans l'entrefer sur toute la hauteur d'observation.



FIGURE 3.32 – Réponse en contrainte de CPCl/NaSal 10% à un cisaillement de 20 s^{-1} . Lorsque l'événement perturbateur remplit l'entrefer sur toute la hauteur de la cellule, la contrainte augmente bruta-lement. Chaque pic dans la réponse en contrainte correspond à un événement.



FIGURE 3.33 – Ces deux graphiques montrent l'évolution des amplitudes et longueurs d'onde des motifs mesurées sur CPCl/NaSal 8 et 10% (à 22°C) et CTAB/NaNO₃ (à 28°C) en fonction du cisaillement ($\dot{\gamma}$) normalisé par la largeur de plateau ($\delta\dot{\gamma}$) de l'échantillon.

La figure 3.33 présente les amplitudes et longueurs d'onde rencontrées sur le plateau de CTAB et des CPCl 8 et 10% en fonction du cisaillement normalisé par la largeur de plateau de l'échantillon. Ce choix de repère nous a permis de constater que le profil de l'interface est similaire entre ces systèmes.

3.2.2 Discussion

La signature mécanique de l'instabilité des CPCl/NaSal présente des similitudes avec celle de CTAB/NaNO₃. De plus, les comportements à l'état stationnaire des CPCl/NaSal sont voisins de CTAB/NaNO₃ où ils présentent des profils de l'interface très proches (même longueur d'onde et amplitude à cisaillement normalisé par la largeur de plateau). La proximité de ces réponses et comportements suggère que l'instabilité se développant dans ces systèmes est la même. Nous avons également observé la déstabilisation de l'interface entre bandes de cisaillement sur le système CTAB(0,3 M)/KBr(0,3 M) à 34°C (figure 3.34 (a)).

D'autres systèmes étudiés dans la littérature présentent des réponses mécaniques suggérant la présence de l'instabilité que nous venons d'évoquer. Les copolymères à blocs sont des molécules constituées de plusieurs segments polymériques. Le P84 est un copolymère triblocs de la famille des « pluronics » [12]. Il peut former des micelles sphériques ou cylindriques. Sous écoulement, il présente une instabilité de l'interface (figure 3.34 (b)) rappelant celle observée sur les différentes concentrations de CPCl/NaSal. La photographie 3.34 (c) montre la séparation en bandes de cisaillement, la phase induite est turbide. Les polymères téléchéliques (figure 3.34 (d)) présentent un *undershoot* dans la réponse en contrainte suggérant que l'instabilité peut s'y développer. Les systèmes en oignons sont des molécules de tensio-actifs structurées en membranes fermées, concentriques et emboîtées. Ils pourraient également présenter la même instabilité. En effet, l'ensemble des réponses en contrainte dans les phases lamellaires lyotropes organisées en oignons [6] présentent une lente croissance vers l'état stationnaire (figure 3.34 (e)), ressemblant à la lente croissance de la contrainte lors de la déstabilisation de l'interface sur les systèmes micellaires, et suggérant la présence de l'instabilité dans ce système.

Ces spécificités nous ont permis d'identifier l'instabilité sur les systèmes de tensio-actifs

 $\rm CTAB/NaNO_3$ et CPCl/NaSal, et suggèrent la présence de la même instabilité sur d'autres systèmes.



FIGURE 3.34 – (a) Déstabilisation de l'interface sur CTAB(0,3 M)/KBr(0,3 M) à 34°C à $\dot{\gamma}=120$ s⁻¹. (b) Réponse en contrainte d'un système de copolymères triblocs (P84), figure empruntée à la référence [12]. La photographie (c) présente l'interface déstabilisée de ce système. (d) Réponse en contrainte d'un système de polymères téléchéliques à $\dot{\gamma}\tau_0=3.09$ [13].(e) Réponses en contrainte d'un système en oignons relaxant lentement vers l'état stationnaire, figure empruntée à la référence [6].

3.3 Structure et dynamique de l'écoulement

3.3.1 Mise en évidence de cellules de convection

Les études menées jusqu'à présent considèrent l'écoulement dans les systèmes micellaires comme purement tangentiel. Dans cette section, à l'aide des observations réalisées dans la *configuration 2* développée lors de cette thèse, nous allons voir que ce n'est pas aussi simple.



FIGURE 3.35 – Série de couples d'images durant deux expériences pour un cisaillement de 30 s⁻¹ sur CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) à 28°C. L'observation de l'entrefer est faite avec le laser pour la première expérience et en lumière blanche pour la deuxième. Sur ces images, le rotor est à gauche et le stator à droite. Le cisaillement est stoppé à t=300 s.

La visualisation en lumière blanche met en évidence une structure périodique sur toute la hauteur principalement visible dans la phase fortement cisaillée. Sur la figure 3.35, nous avons juxtaposé deux expériences sur CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3(0,405 \text{ M})$ à 28°C à 30 s⁻¹, dont les observations sont faites pour l'une avec la nappe laser radiale, l'autre avec le faisceau de lumière blanche traversant la cellule. Les couples d'images sont présentés aux mêmes instants, permettant de comparer nos observations. Sur les images en lumière blanche, des structures se développent dans la phase induite.

Au repos, le fluide est complètement transparent en lumière blanche. Au début du cisaillement, il devient complètement turbide (image sombre sur la figure 3.35). On distingue l'interface (bande sombre verticale). La déstabilisation de l'interface commence et des structures apparaissent au niveau des minima de l'interface. Elles se développent par la suite en cellules convectives jusqu'à occuper la phase induite pour former une paire de cellules contra-rotatives. Ces paires sont empilées suivant la vorticité. L'écoulement est donc tri-dimensionnel. Ces cellules sont visibles par différence d'indice optique entre les deux bandes de cisaillement. En effet, lors de la déstabilisation, la phase faiblement cisaillée semble « absorbée » dans la phase fortement cisaillée mettant ainsi en évidence la structure interne de l'écoulement. Il est important de préciser que cette différence de contraste est stable dans le temps : les recirculations entre les deux phases n'homogénéisent pas pour autant le fluide. Ce phénomène maintient une différence d'indice optique apparemment constante dans le temps. Le motif est stationnaire jusqu'à l'arrêt du cisaillement, intervenant ici à 300 s. Les profils de l'interface observés sur le plateau en lumière blanche ont exactement les mêmes longueurs d'onde que ceux observés avec le laser.

La figure 3.36 permet de voir davantage de détails sur ces rouleaux et leur dynamique avec une série d'images en lumière blanche prise à 40 s^{-1} . Ces images ont été enregistrées en résolution maximum $(7\mu m)$ et traitées pour améliorer le contraste. À t = 0,2 s, l'image est sombre, cela correspond à l'overshoot dans la réponse en contrainte. De 7,6 à 10,4 s, l'interface se forme et devient plus marquée. Elle continue de migrer jusqu'à sa position d'équilibre, puis se déstabilise à 41,6 s. De 40 à 80 s, on peut voir distinctement trois rouleaux se former (numérotés de 1 à 3 sur la dernière image). Il est possible d'enregistrer la position de l'interface lors de leur formation et ainsi de mesurer les vitesses radiales et verticales de développement des rouleaux. Sur chaque image, nous mesurons la position d'une fluctuation d'indice optique (liseret noir sur les photographies 3.37 (a,b)), le déplacement suivant z et r est enregistré au cours du temps ce qui nous permet de mesurer la vitesse de développement des rouleaux. L'évolution de la distance parcourue en fonction du temps est linéaire. La pente de la droite d'ajustement donne la vitesse de développement. Pour les deux minima, nous avons $v_{r1}=-33\pm8\mu \text{m.s}^{-1}$ et $v_{r2}=-28,1\pm8\mu \text{m.s}^{-1}$. Et pour les trois rouleaux, nous avons une vitesse de développement de v_{z1} =-71±2µm.s⁻¹, v_{z2} =85,8±5,4µm.s⁻¹ et $v_{z3} = -70.8 \pm 4.3 \mu \text{m.s}^{-1}$. Les v_r sont cohérents entre eux. Les rouleaux, étant contrarotatifs, doivent avoir les mêmes v_z en norme, ce qui est le cas aux erreurs de mesures près. Ces vitesses de développement des rouleaux sont très faibles devant la vitesse de l'écoulement primaire tangentiel, qui au rotor est $v_{\theta} = 43,3 \text{ mm.s}^{-1}$ pour ce cisaillement. Trois ordres de grandeur séparent la vitesse de l'écoulement principal, des vitesses de développement des rouleaux.

La formation de rouleaux et donc d'un écoulement secondaire pourrait être à l'origine de la pente anormalement élevée du plateau. La présence de rouleaux pourrait se traduire par l'augmentation de la résistance du fluide à l'écoulement et donc de sa viscosité apparente. Ainsi, le plateau présenterait une pente plus importante, pouvant expliquer la pente anormalement élevée observée au chapitre 2. De plus, le changement de pente observé à $\dot{\gamma} = 60 \text{ s}^{-1}$ sur le système CTAB/NaNO₃ pourrait être dû au déplacement des rouleaux, observé à partir de ce cisaillement.

Si l'on regarde de plus près la dynamique de l'interface au niveau des minima, on remarque qu'ils oscillent avec la même période que celle mesurée au début de ce chapitre. Cependant, cette nouvelle technique de visualisation apporte des informations supplémentaires sur l'écoulement. En effet, le minimum sur le haut des images oscille (voir la figure 3.36, images de 77,2 à 81 s). À 77,2 s, l'interface semble discontinue tandis qu'à 80 s, un morceau d'interface s'est reformé. Celui-ci va se déplacer vers le rotor jusqu'à disparaître dans la phase fortement cisaillée. Le phénomène d'oscillation des minima semble associé à la reconstruction d'une interface dans la zone du minimum et à sa destruction dans la phase fortement cisaillée.



FIGURE 3.36 – Expérience en lumière blanche sur $CTAB(0,3 \text{ M})/NaNO_3(0,405 \text{ M})$ à 28°C pour un cisaillement de 40 s⁻¹. Sur ces images, le rotor est à gauche et le stator à droite. Des rouleaux se développent dans la phase fluide induite.



FIGURE 3.37 – Mesure de la vitesse de dévloppement des rouleaux. La fluctuation d'indice optique marquée par un liseret noir, sur les photographies (a,b), est reperée (marque rouge sur (a)) par mesure de l'intensité lumineuse en niveaux de gris (graphique (c) en unités arbitraires). Le déplacement des liserets suivant r et z sur la série d'images donne la distance parcourue en fonction du temps. L'évolution de cette distance au cours du temps est linéaire. La pente de la droite d'ajustement donne la vitesse de développement (ici, v_z pour le rouleau 1, graphique (d)).

Aux temps longs, la persistance du motif en lumière blanche est bien plus grande que celle observée avec la nappe laser : sur la figure 3.36, elle est de 1,5 minute environ contre moins de 0,2 seconde mesurée avec la nappe laser. Cette persistance peut aller jusqu'à quatre minutes après la fin du cisaillement. La relaxation très lente du motif en lumière blanche peut faire penser à la relaxation d'une fluctuation de concentration dans l'échantillon. En effet, cette différence d'indice optique pourrait être imputée à un gradient de concentration micellaire entre les deux phases générées par l'écoulement.

De plus, cette différence d'indice optique entre bandes de cisaillement se rencontre sur d'autres systèmes. La figure 3.38 montre quatre photographies de l'entrefer pour quatre systèmes micellaires différents.

La photographie 3.38 (a) est prise sur le système CTAB/KBr pour $\dot{\gamma}=100 \text{ s}^{-1}$. Les rouleaux sont visibles proches du rotor, sur le bas de l'image. Le système CPCl/NaSal 8% pour $\dot{\gamma}=12 \text{ s}^{-1}$ présente des rouleaux moins marqués (fig. 3.38 (b)). Sur 3.38 (c,d), respectivement CPCl/NaSal 10 et 12% pour $\dot{\gamma}=12$ et 10 s⁻¹, la différence d'indice optique est nettement plus importante, permettant de distinguer une structure dans les images brutes. En revanche, il devient difficile de déceler la forme des rouleaux. Pour cette raison, il ne nous a pas été possible de déterminer les composantes v_r et v_z de la vitesse de développement des rouleaux, comme sur le système CTAB/NaNO₃. Plus la concentration de CPCl/NaSal est élevée et plus la structure et la dynamique de l'écoulement deviennent complexes. De même, plus cette concentration augmente et plus le motif en lumière blanche est marqué. Cela suggère une différence d'indice entre bandes plus importante.



FIGURE 3.38 - Photographies de l'entrefer : (a) CTAB/KBr à 34°C $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1},$ pour (b) CPCl/NaSal 8% à 22°C $\dot{\gamma}=12$ s^{-1} , pour (c)CPCl/NaSal 10% à 22°C pour $\dot{\gamma}$ =12 s⁻¹ et (d) CPCl/NaSal 12% à 22°C pour $\dot{\gamma}=10 \text{ s}^{-1}$. (a,b) sont obtenues par soustraction de l'image au repos de l'entrefer.

Nous avons mis en évidence des cellules de convection prouvant que l'écoulement est tridimensionnel. Nous pouvons relier cette observation aux récentes mesures de profils de vitesse faites par Bécu *et al* [26]. En utilisant la technique de vélocimétrie par diffusion d'ultra-sons sur CTAB/D₂O (ϕ =20%), Bécu *et al.* ont montré des fluctuations des profils moyens de la vitesse pouvant dépasser la vitesse imposée par le rotor. Cette technique [22] ne permet de mesurer qu'une projection de la vitesse ($v(x) = v_{\theta}(x) + \frac{v_r(x)}{\tan \theta}$, où $\theta \simeq 15^{\circ}$). Ce dépassement n'est donc possible que si la composante radiale de la vitesse de l'écoulement est non-nulle. Dans la référence [26], tan $\theta \simeq 0, 25$, la vitesse mesurée est $v(x) = v_{\theta}(x) + 4v_r(x)$. Le dépassement apparent observé de la vitesse du rotor montre indirectement qu'il existe une composante radiale de la vitesse de l'écoulement, suggérant un écoulement tri-dimensionnel.

3.3.2 Corrélation entre dynamique interfaciale et écoulement

Dans cette section, nous voulons comparer la formation des rouleaux et la déstabilisation de l'interface. L'objectif est d'observer l'organisation de l'écoulement avec des particules réfléchissantes [111]. Le système CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3(0,405 \text{ M})$ est ensemencé avec des particules de kalliroscope afin de visualiser l'écoulement (*configuration 3*). La concentration de solution de kalliroscope est de 1,2% en masse; cette concentration permet une visualisation correcte, sans modifier les propriétés rhéologiques de la solution (courbe d'écoulement inchangée, figure 3.39).



FIGURE 3.39 – Courbes d'écoulement de CTAB/NaNO₃ à 28°C avec paillettes (\circ) et sans paillettes (\blacktriangle).

La figure 3.40 présente un exemple d'expérience réalisée avec des paillettes. Au début de l'écoulement à 40 s⁻¹, durant une période transitoire, aucun motif n'apparaît. Après environ une trentaine de secondes, une alternance de bandes brillantes et de bandes sombres (figure 3.40 (b)) se forment suivant la hauteur de la cellule. Cette succession de bandes horizontales sombres et brillantes est observable sur toute la surface de la cellule et est par conséquent axisymétrique. Cette observation est caractéristique du motif observé dans l'instabilité de Taylor-Couette [66] et indique que l'écoulement de base est modifié. Le caractère axisymétrique du motif se retrouve dans les diagrammes spatiotemporels de l'extérieur et de l'intérieur de la cellule, observé à des positions diamétralement opposées (figure 3.41). Des motifs identiques se développent simultanément en différentes positions angulaires.

La longueur d'onde du motif généré par les paillettes (λ_{ext} , figure 3.40 (b) et (c)) est de 1,8 mm, alors que la longueur d'onde du profil de l'interface mesurée sur 3.40 (d) et (e) est de 3,6 mm. Les paillettes s'orientent suivant les lignes de courant. La variation d'intensité lumineuse observée provient de la variation de l'orientation de la face réfléchissante des paillettes. Cette orientation donne un indice sur la forme de l'écoulement. En effet, les zones sombres correspondent aux zones où les paillettes ne réfléchissent pas la lumière dans la direction d'observation (sur l'image (e), au niveau d'un minimum ou d'un maximum de l'interface, flèches oranges pointées vers le bas et le haut). Leur face réfléchissante est parallèle au faisceau de lumière, indiquant un écoulement radial sur les minima et maxima de l'interface (entre deux rouleaux). Tandis que les zones brillantes correspondent à une orientation des paillettes orthogonale à la direction d'observation. En d'autres termes, l'axe des rouleaux est centré sur les bandes brillantes, tandis que les bandes sombres correspondent à un espace interstitiel entre deux rouleaux (figure 3.40 (e)). Comme il y a deux rouleaux par maximum de l'interface, la longueur d'onde de l'intensité lumineuse réfléchie par les paillettes est deux fois plus petite que celle de l'interface et donc $2\lambda_{paillettes} = \lambda_{interface}$. La figure 3.43 montre l'évolution de $2\lambda_{paillettes}$ et $\lambda_{interface}$ en fonction du cisaillement. Nous constatons que ces longueurs sont identiques à un cisaillement donné. Les bandes brillantes permettent donc d'identifier la position de l'axe des rouleaux.



FIGURE 3.40 - (a), (b) Vue extérieure de la cellule pour observer la lumière réfléchie par les paillettes (configuration 3). (a) avant le cisaillement, la lumière réfléchie est uniforme, au gradient d'intensité lumineuse près. En effet, l'intensité lumineuse est légérement plus importante vers le haut de la cellule (à gauche des photographies (a) et (b)). (b) après 3 minutes de cisaillement à 40 s⁻¹, il y a alternance de bandes brillantes et plus sombres suivant la hauteur de la cellule (ici en abscisse).s (c) présente le profil d'intensité lumineuse observé sur (b). (d) et (e) montrent respectivement l'image de l'entrefer vue avec le laser et en lumière blanche sur une hauteur d'observation moitié plus petite que sur la vue extérieure (b).



FIGURE 3.41 – Diagrammes spatiotemporels de CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3(0,405 \text{ M})$ pour un cisaillement de 75 s⁻¹ : (a) profil de l'interface observée à l'intérieur de la cellule, (b) intensité lumineuse réfléchie par le milieu ensemencé avec des paillettes de Kalliroscope à 1,2% en masse. Les motifs correspondent et sont pris à deux positions diamétralement opposées, soulignant le caractère axisymétrique du motif. Figure extraite de [111].

3.3. Structure et dynamique de l'écoulement

Il est important de noter que pour des valeurs du cisaillement en dehors du plateau, aucun motif de paillettes n'est observé, que ce soit sur la première ou la seconde branche.

En utilisant les images de l'extérieur de la cellule $I_0(z)$, nous reconstruisons le diagramme spatiotemporel du profil d'instensité lumineuse réfléchie $I_0(z,t)$, permettant ainsi de visualiser la dynamique de l'écoulement. La figure 3.42 montre un diagramme spatiotemporel (a) obtenu en configuration 3 à partir des images de l'extérieur de la cellule, au démarrage de l'instabilité. Le cisaillement imposé est de 40 s⁻¹. Sur 3.42 (a), l'instabilité forme une alternance de bandes brillantes et sombres suivant toute la hauteur du rotor. Le 3.42 (b) est un agrandissement de la partie centrale de (a), permettant la comparaison avec le diagramme (c) de l'interface. À partir de 60 s, le motif des deux diagrammes sont réguliers indiquant que l'interface et les rouleaux sont stationnaires. Nous avons constaté que la formation d'un minimum de l'interface (bande sombre sur le diagramme spatiotemporel) correspond à la formation d'une bande sombre sur le diagramme spatiotemporel du motif dû aux paillettes. La corrélation de ce type d'événement (formation d'un minimum de l'interface) a lieu à une même hauteur dans les deux diagrammes.



FIGURE 3.42 – Diagrammes spatiotemporels de CTAB $(0,3 \text{ M})/\text{NaNO}_3(0,405 \text{ M})$ ensemencé avec des paillettes de Kalliroscope. Pour cette expérience, on impose $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$. (a) Diagramme spatiotemporel du motif des paillettes pris en filmant l'extérieur de la cellule sur toute sa hauteur. (b) agrandissement sur la partie centrale de (a). (c) Diagramme spatiotemporel de l'interface dans l'entrefer à mi-hauteur de la cellule.



FIGURE 3.43 – Évolution de la longueur d'onde de l'interface en rouge et du double de la longueur d'onde du motif des paillettes. Ces valeurs sont moyennées sur trois essais.

La figure 3.44 représente trois séries d'expériences mesurant ces deux temps pour différents cisaillements sur le plateau. Pour chaque mesure, nous regardons la formation d'un minimum de l'interface et notons sa position pour la corréler au motif généré par les paillettes vu à l'extérieur de la cellule. Ainsi, nous observons un même minimum avec les deux techniques. L'objectif est de corréler le temps du début de déstabilisation de l'interface, avec le temps auquel les rouleaux se forment. Il ne nous a pas été possible de mesurer ces temps pour des cisaillements inférieurs à 10 s^{-1} . Le premier constat est que ces temps de déstabilisation de l'interface et de formation des rouleaux ont la même évolution avec le cisaillement, ils deviennent plus longs passant d'une vingtaine de secondes, pour le petits cisaillements, à une quarantaine de secondes, pour les plus grands. Sur ces graphiques, il est impossible de dire si l'un des phénomènes intervient avant l'autre, et cela quel que soit le cisaillement. Nous ne sommes pas en mesure de dire si la déstabilisation de l'interface est à l'origine du motif des paillettes ou si la formation de rouleaux déstabilise l'interface. Ce problème sera rediscuté à la fin de ce chapitre.



FIGURE 3.44 – Les temps de déstabilisation de l'interface (en rouge) et temps d'apparition du motif extérieur dû aux paillettes (en noir) sont présentés sur trois séries d'expériences pour lesquelles les évènements intérieurs (formation d'un minimum de l'interface) et extérieurs (formation d'une bande sombre dans le motif des paillettes à l'extérieur de la cellule) sont corrélés en hauteur. Les barres d'erreur sont les incertitudes sur la mesure des temps correspondant à un événement.

3.3.3 Dynamique à haut cisaillement

Lors du changement de pente à $\dot{\gamma_+}$, le comportement de l'interface de CTAB/NaNO₃ correspond au comportement (c) défini au début de ce chapitre. Une succession de nucléations et fusions de minima se produisent continûment (figure 3.45).



FIGURE 3.45 – Série d'images en lumière blanche de l'entrefer à $\dot{\gamma} =$ 70 s⁻¹. La largeur de l'image correspond à celle de l'entrefer (1,13 mm). L'image au repos est soustraite de toutes les autres images pour enlever les défauts de la cellule et ne garder que les détails du motif.

La figure 3.46 présente une série de diagrammes spatiotemporels pour différents cisaillements d'une durée de 1h30. Le phénomène de créations et annihilations de minima a tendance à s'accélérer avec le taux de cisaillement.



FIGURE 3.46 – Diagrammes spatiotemporels de l'interface pour CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) à 28°C. (a) $\dot{\gamma} = 60 \text{ s}^{-1}$, (b) $\dot{\gamma} = 65 \text{ s}^{-1}$, (c) $\dot{\gamma} = 70 \text{ s}^{-1}$ et (d) $\dot{\gamma} = 75 \text{ s}^{-1}$ pour une durée de 1h30.

Les diagrammes 3.46 (b,c,d) présentent un déplacement d'ensemble du motif de l'interface. Cette dérive peut se produire soit vers le haut, soit vers le bas de cellule. Le diagramme 3.46 (c) en montre un bon exemple entre 30 et 45 minutes. La vitesse de phase est de $7\pm1 \ \mu m.s^{-1}$ à 65 s⁻¹, $8,5\pm1 \ \mu m.s^{-1}$ à 70 s⁻¹ et $8\pm1 \ \mu m.s^{-1}$ à 75 s⁻¹. Cette vitesse ne semble pas dépendre du cisaillement.

Nous avons réalisé des expériences sur deux heures pour des cisaillements compris entre 63 et 84 s⁻¹. Au-delà, l'amplitude de l'interface devient trop faible pour être mesurée. Nous mesurons le temps de vie d'un minimum de l'interface délimité par sa nucléation et sa fusion, cela revient sur le diagramme spatiotemporel à mesurer la longueur noeud à noeud de toutes les branches.

La figure 3.47 gauche montre l'évolution du temps de vie moyen des rouleaux en fonction du cisaillement. Les temps de vie ne dépendent pas du cisaillement dans la gamme de 70 à 84 s⁻¹. Cette mesure est concordante avec la mesure du taux d'annihilation des paires de rouleaux (figure 3.48), qui reste constant sur cette même gamme. Sur la figure 3.47 droite, on remarque que l'échelle de temps de vie des rouleaux est de l'ordre de 100 s; ce temps ne correspond ni à la gamme de période imposé par la rotation, qui est de l'ordre de la seconde, ni au temps propre du système. Il est par conséquent intrinsèque au système.



FIGURE 3.47 – A gauche : Statistique des temps de vie moyen des rouleaux en fonction du taux de cisaillement imposé. A droite : histogramme des temps de vie des rouleaux pour le régime $\dot{\gamma} = 72 - 84 \text{ s}^{-1}$.



FIGURE 3.48 – Taux d'annihilation des paires de rouleaux en fonction du taux de cisaillement imposé.

3.4 Moteur de l'instabilité : mécanismes envisagés

Dans cette section, nous passons en revue les différents candidats potentiellement responsables de la déstabilisation de l'interface et de la formation de cellules de convection dans l'écoulement.

3.4.1 Instabilités d'origine inertielle

3.4.1.1 Instabilité de Taylor-Couette

Cette instabilité se développe lors de l'écoulement d'un fluide simple entre deux cylindres concentriques. L'instabilité de Taylor-Couette produit des recirculations lors de l'écoulement d'un fluide Newtonien à partir d'un seuil critique du nombre de Taylor. Ces recirculations sont des rouleaux toroïdaux empilés suivant la hauteur. Cette instabilité a pour moteur la force centrifuge. L'instabilité apparaît pour $Ta_c \simeq 1712$. Dans la limite des petits entrefers, le nombre de Taylor s'écrit $Ta = \dot{\gamma}^2 \left(\frac{R_2^2 - R_1^2}{R_2^2 + R_1^2}\right)^2 R_1 e^3 \left(\frac{\rho}{\eta}\right)^2$.

La figure 3.49 montre une expérience réalisée sur de l'eau à 120 s⁻¹, à 27°C où la viscosité de l'eau est $\eta = 1,27.10^{-3}$ Pa.s, ce qui correspond à Ta = 2170. Sur l'image, le rotor est en bas, le stator en haut de l'image et le bas de la cellule est à droite. Des cellules de recirculations de Taylor apparaissent nettement.

La table 3.1 montre clairement que les valeurs du nombre de Taylor sont très en dessous du seuil de déclenchement de l'instabilité de Taylor-Couette. Le nombre de Reynolds montre que l'écoulement se fait en régime laminaire, loin de la turbulence pour le solvant Newtonien. Les effets centrifuges sont négligeables dans les gammes de cisaillements des systèmes de micelles géantes. L'instabilité de Taylor-Couette ne peut pas être à l'origine de l'instabilité de l'interface et de l'écoulement 3D.



FIGURE 3.49 – Illustration de l'instabilité de Taylor. La cellule est la même que précédemment. Le fluide est de l'eau pure ensemencée avec une faible concentration de particules de kalliroscope pour visualiser les rouleaux dans l'entrefer.

| Echantillon | T°C | $\dot{\gamma}_1(\mathrm{s}^{-1})$ | $\dot{\gamma}_2(\mathrm{s}^{-1})$ | $\operatorname{Ta}(\dot{\gamma}_1)$ | $\operatorname{Re}(\dot{\gamma}_1)$ | $\operatorname{Ta}(\dot{\gamma}_2)$ | $\operatorname{Re}(\dot{\gamma}_2)$ |
|------------------------|-----|-----------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| CTAB/NaNO ₃ | 28 | $4,9{\pm}0,2$ | 92 ± 5 | $7,9.10^{-8}$ | $6, 4.10^{-4}$ | $5,7.10^{-3}$ | $0,\!17$ |
| CPCl/NaSal 6,3% | 22 | $2,3\pm0,1$ | $21,4{\pm}1,2$ | $2,5.10^{-8}$ | $3, 6.10^{-4}$ | 10^{-4} | $2,3.10^{-2}$ |
| CPCl/NaSal 8% | 22 | $1,8{\pm}0,1$ | $22,2{\pm}0,9$ | $4, 8.10^{-9}$ | $1, 6.10^{-4}$ | $5, 5.10^{-5}$ | $1,7.10^{-2}$ |
| CPCl/NaSal 10% | 22 | $1,5\pm0,1$ | $20,6{\pm}0,9$ | $1, 1.10^{-9}$ | $7, 6.10^{-5}$ | $2,2.10^{-5}$ | $1, 1.10^{-2}$ |

TABLE 3.1 – Récapitulatif des valeurs atteintes pour les nombres de Taylor et Reynolds dans la cellule de Couette à l'entrée et à la sortie du plateau pour les différents échantillons étudiés.

3.4.1.2 Instabilité de Kelvin-Helmholtz

La différence de vitesse moyenne entre les deux bandes de cisaillement pourrait suggérer une instabilité de Kelvin-Helmholtz. Néanmoins, cette instabilité nécessite un saut de vitesse entre les deux couches de fluide [67], à l'interface. Or, d'après les profils de vitesse mesurés sur les systèmes micellaires [23, 26], il n'existe apparement pas de saut de vitesse à l'interface (figure 1.14). De plus, l'instabilité de Kelvin-Helmholtz se développe dans la direction de l'écoulement, alors qu'elle est suivant la vorticité dans les deux systèmes micellaires présentés précédemment. Il semble également clair que les recirculations observées dans nos fluides ne ressemblent pas, ni ne se développent comme celles de Kelvin-Helmholtz. Le développement de cette instabilité n'est pas compatible avec nos observations, ainsi qu'avec les caractéristiques des systèmes de micelles géantes.

3.4.2 Instabilités à bas *Reynolds*

3.4.2.1 Instabilité entre deux films liquides cisaillés

La différence de viscosité entre bandes de cisaillement fait penser à une instabilité de films liquides cisaillés. Charru et Barthelet ont montrés [69, 112, 113] qu'une instabilité de l'interface naissait entre deux fluides immiscibles de différentes viscosités lorsqu'ils sont cisaillés. Au niveau de l'interface, il y a une discontinuité du cisaillement due à la différence de viscosité entre les deux fluides. Cette discontinuité génère un saut brutal dans le profil de vitesse. Des perturbations vont se développer pour rétablir la continuité de la vitesse. La conséquence est l'ondulation de l'interface et la génération d'un écoulement secondaire, au niveau de l'interface, faible devant l'écoulement imposé.

Bécu *et al.* [26] suggèrent une condition pour que l'instabilité de l'interface, décrite ci-dessus, se développe dans dans les systèmes de micelles : il faut nécessairement que le temps de croissance de l'instabilité soit plus court que le temps nécessaire pour produire la structure induite par le cisaillement. Ce qui s'explique de la manière suivante : lorsqu'un maximum de l'interface se forme, la phase fortement cisaillée se déplace dans une zone faiblement cisaillée (et inversement pour un minimum). Sa structure va s'adapter au nouveau cisaillement et elle revient à l'état faiblement cisaillée. L'interface ne peut rester déstabilisée que si la relaxation, de la phase fortement cisaillée vers un état faiblement cisaillé, se produit plus lentement que le développement de l'instabilité. Dans le cas contraire, la relaxation tuerait l'instabilité, et l'interface resterait plane. Ce point est crucial mais est sujet à polémique. En effet, si l'on associe la turbidité à la phase induite, comme ce que nous faisons, sa création est quasi-instantanée. Rappelons que dès le début du cisaillement tout l'entrefer est turbide. Nous pourrions tout aussi bien aussi définir ce temps de production, comme le temps nécessaire pour former deux bandes dont l'interface est plane et à l'équilibre. Il nous est impossible d'observer la microstructure induite, et donc ce temps de production est très difficile à définir expérimentalement.

Néanmoins, nous avons vu qu'en lumière blanche le motif met plusieurs minutes à relaxer. De plus, le motif en lumière blanche se maintient au cours du cisaillement. La relaxation de la phase induite est beaucoup plus longue que le temps de l'apparition de la déstabilisation de l'interface, permettant ainsi à l'instabilité entre deux films liquides de se développer.

Toutefois, la déstabilisation de l'interface se développe ici dans la direction de l'écoulement et en cela diffère de celle observée suivant la vorticité dans le cas des systèmes de micelles géantes.

3.4.2.2 Instabilité d'interface

S. Fielding a proposée une méthode numérique de calcul du champ de contrainte et de vitesse [107–109] basée sur le mécanisme de Hinch [114] et l'équation diffusive Johnson-Segalman (dJS) [42,115]. L'équation dJS gouverne la contrainte due aux polymères, nous développerons ce modèle plus en détails dans le chapitre suivant. Le mécanisme de Hinch est basé sur le saut des contraintes normales à l'interface entre deux fluides non-miscibles. Une perturbation de l'interface est amplifiée par les contraintes normales conduisant à augmenter la déformation de l'interface, comme esquissé sur la figure 3.50. Le déplacement de l'interface engendre un mouvement de recirculations et des cellules de convection apparaissent.



FIGURE 3.50 – Illustration du mécanisme de Hinch. Deux fluides non-miscibles sont placés dans une conduite circulaire. Une légère perturbation de l'interface (d'amplitude δ) est amplifiée par la force due à la différence des contraintes normales entre les deux fluides. L'instabilité de l'interface va croître et générer un écoulement secondaire. Les flèches noires représentent la force s'exerçant sur l'interface, tandis que les flèches bleues indiquent la direction de l'écoulement. Figure empruntée à la référence [114].

S. Fielding obtient par simulation un champ de vitesse présentant des recirculations au niveau de l'interface près de la paroi mobile (figure 3.51).



FIGURE 3.51 – Simulation numérique du champ de vitesse de l'écoulement basée sur l'équation d-JS d'après S. Fielding [109]. La norme et le sens de la vitesse sont indiqués par les flèches. Des rouleaux contra-rotatifs se développent au niveau de l'interface matérialisée en trait plein.

Dans le mécanisme proposé par Fielding, l'instabilité de l'interface, due au saut en contrainte σ_{xx} entre bandes de cisaillement et au saut en cisaillement, est à l'origine de l'écoulement 3D. Les mesures faites avec les particules de kalliroscope n'ont pas permis de déterminer si l'interface se déstabilisait avant ou après la formation des cellules de convection. Il n'est pas possible de conclure sur ce scénario.

3.4.2.3 Instabilité élastique

Un fluide élastique peut présenter sous écoulement une instabilité due à son élasticité. Elle a pour moteur la première différence des contraintes normales. La première observation de l'effet des contraintes normales fut faite par Weissenberg [73] dans une cellule de Couette avec le cylindre intérieur en rotation.

Nous avons vu au premier chapitre qu'en géométrie Couette, la première différence des contraintes normales engendrent une force centripète qui plaque le fluide sur l'axe tournant central, donnant du « rod-climbing ». En 1966, Giesekus réalisa des expériences sur un fluide élastique rhéofluidifiant dans une cellule de Couette et montra pour la première fois un écoulement secondaire présentant des cellules de convection à $Ta = 10^{-2}$ [75]. À partir d'une vitesse de rotation seuil, ces recirculations se forment et sont stationnaires [74,78]. En géométrie Couette, cette instabilité est due à une force de volume centripète $\frac{N_1}{R}$ avec R le rayon de courbure locale et $N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22}$, la première différence des contraintes normales. Cette force s'oppose donc à la force centrifuge. Négligeable à petits cisaillements, la première différence des contraintes normales devient rapidement plus importante que la contrainte tangentielle pour des cisaillements sur le plateau. Il existe une seconde différence des contraintes normales ($N_2 = \sigma_{22} - \sigma_{33}$), généralement beaucoup plus faible en norme mais qui peut entrer en ligne de compte comme critère de stabilité de calculs théoriques (voir la référence [65]). Nous avons mesuré N_1 en géométrie cône-plan (décrite au chapitre 2).



FIGURE 3.52 – À gauche : Variation de la première différence des contraintes normales avec le cisaillement. À droite : Evolution de $\left(\frac{e}{R_1}\right)^{\frac{1}{2}}$ Wi avec le cisaillement, où Wi est le nombre de Weissenberg défini comme Wi = $\frac{N_1}{\sigma}$. En bleu : CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) à 28°C. En dégradé de couleurs chaudes : les différentes concentrations en CPCl/NaSal à 22°C. Les temps de mesure sont de 60 secondes par point pour CTAB, et respectivement de 15, 70, 120 et 300 secondes par point pour CPCl 6.3, 8, 10 et les 12, 14%. Les temps choisis correspondent à l'état stationnaire du système pour CTAB/NaNO₃ et les CPCl/NaSal 10, 12 et 14%. Pour les CPCl/NaSal 6.3 et 12%, le temps d'acquisition est choisi le plus proche de l'état stationnaire.

La figure 3.52 de gauche montre la variation de la première différence des contraintes normales en fonction du cisaillement pour les différents systèmes étudiés. Les mesures des contraintes normales ont été réalisé en géométrie cône-plan. Les temps d'acquisition sont de 60 secondes par point de mesure pour CTAB/NaNO₃, et respectivement de 15, 70, 120 et 300 secondes par point pour CPCl/NaSal 6.3, 8, 10 et les 12, 14%. À l'exception des systèmes CPCl/NaSal 6,3 et 8%, les temps d'acquisition correspondent à l'état stationnaire du système. Pour les systèmes CPCl/NaSal 6,3 et 8%, il ne nous a pas été possible d'atteindre l'état stationnaire, l'échantillon étant éjecté de la géométrie. Nous avons cependant choisi des temps d'acquisition les plus longs possibles, nous permettant une estimation des contraintes normales la plus proche de leur valeur à l'état stationnaire.

Pour les CPCl/NaSal, plus la concentration est élevée et plus N_1 est grand à cisaillement égal. Plus la concentration est élevée et plus les micelles sont longues et enchevêtrées augmentant ainsi les forces élastiques dans le fluide [116].

Comme pour l'instabilité de Taylor-Couette, il convient de définir un nombre adimensionné pour l'instabilité élastique. Ce nombre est défini par McKinley et Pakdel [79,80] comme $\left(\frac{e}{B_1}\right)^{\frac{1}{2}}$ Wi, avec *e* l'entrefer, R_1 le rayon intérieur et Wi le nombre de Weissenberg défini comme le rapport de la première différence des contraintes normales N_1 sur la contrainte tangentielle $\sigma_{r\theta}$ (Wi $=\frac{N_1}{\sigma_{r\theta}}$). La figure 3.52 décline l'évolution de $\left(\frac{e}{R_1}\right)^{\frac{1}{2}}$ Wi avec le cisaillement. L'intabilité élastique est déclenchée pour $\left(\frac{e}{R_1}\right)^{\frac{1}{2}}$ Wi > M_c où M_c est un nombre critique correspondant au seuil de l'instabilité [79,117]. Toute la difficulté va venir de la détermination de ce nombre qui peut être calculé mais reste dépendant du modèle. M $_c\simeq 6$ pour le modèle Oldroyd-B et le modèle de Maxwell surconvecté [65, 78]. Néanmoins, ils ne décrivent pas un système rhéofluidifiant et cette valeur ne permettra de donner qu'un ordre de grandeur du seuil critique de l'instabilité élastique. Les études théoriques menées jusqu'ici sur l'instabilité élastique concernent essentiellement des fluides dont la viscosité est constante avec le cisaillement [78,80]. Néanmoins, Larson [81] a estimé pour un fluide rhéofluidifiant que ce seuil devait être inférieur à celui d'un fluide non-rhéofluidifiant. Sur la figure 3.52, courbe bleue, la valeur seuil du nombre critique est atteinte à 65 s⁻¹ pour $CTAB(0,3 M)/NaNO_3(0,405 M)$. L'instabilité élastique est donc suceptible de se développer dans la phase induite cisaillée à $\dot{\gamma}_2=92$ s⁻¹. Pour les CPCl/NaSal, le seuil est atteint à 18 s⁻¹, soit à l'extrême fin du plateau. L'instabilité peut se développer dans la phase induite cisaillée à $\dot{\gamma}_2=22$ s^{-1} . Dans tous ces systèmes, la phase induite est suceptible de développer l'instabilité élastique.

On peut aisément vérifier que la force centrifuge évoquée à la section précédente est négligeable devant la force élastique, en comparant leur ordre de grandeur dans nos fluides. Considérons un élément de fluide cubique de $c=100 \ \mu m$ de côté cisaillé à 40 s⁻¹ et à une distance r de 14 mm de l'axe de rotation dans notre système expérimental. La force centrifuge $F_{cent} = mr\omega^2$ agissant sur cet élément est de l'ordre de 10^{-10} N, tandis que la force élastique $F_{el} = \frac{N_1(\dot{\gamma})}{r}c^3$ est de l'ordre de 10^{-7} N. La force élastique est donc 1 000 fois plus importante que la force centrifuge dans nos fluides.

3.5 Conclusions et perspectives

Nous avons vu que l'interface entre bandes de cisaillement est instable. Cette instabilité de l'interface est associée à une signature rhéologique caractéristique commune à plusieurs systèmes de tensio-actifs. Cette signature mécanique est corrélée aux observations en optique et se produit en trois temps qui sont :

- 1. Construction et migration de l'interface vers le rotor, accompagnées respectivement d'un overshoot dans la réponse en contrainte.
- 2. Migration de l'interface fine vers sa position d'équilibre, associée avec une croissance linéaire dans l'*undershoot* en contrainte.
- 3. Déstabilisation de l'interface, associée avec une croissance mono-exponentielle dans l'*under-shoot* en contrainte.

Nous avons vu que les paramètres géométriques, hauteur et rayon intérieur, influent sur le système. La hauteur influe sur la sensibilité du système aux effets de bords, tandis que le rayon intérieur influe sur la gamme des cisaillements accessibles avant la perturbation du motif de l'interface par l'effet *Weissenberg*. Il serait intéressant d'observer le système dans une cellule de Couette de grande hauteur (dizaine de centimètres) pour limiter les effets de bords. Cependant, en augmentant la hauteur de la cellule, la coaxialité de la géométrie va poser problème. En effet, plus la cellule est haute et plus il est difficile de limiter le défaut de coaxialité.

Nous avons montré que cette instabilité est commune à plusieurs systèmes. L'observation de recirculations dans les systèmes de micelles géantes est tout à fait inédite et représente une avancée expérimentale importante. En effet, pour la première fois des cellules de convection sont observées sur ces systèmes. Toutefois, il reste à mesurer précisément le champ de vitesse pour quantifier les vitesses de recirculation dans l'écoulement secondaire et pour caractériser la structure exacte des rouleaux. Les méthodes de mesure du champ de vitesse utilisées actuellement n'ont pas accès aux composantes de la vitesse radiale et verticale [23, 26, 47]. Elles ont cependant permis d'observer des fluctuations temporelles de ces profils de vitesse [22, 26, 118] suggérant que les autres composantes ne sont pas nulles.

Le franchissement du seuil de l'instabilité élastique, l'effet *Weissenberg*, la seconde branche rhéoépaississante en apparence observée conjointement avec un écoulement apparemment désordonné rappelant la turbulence élastique, orientent fortement vers l'instabilité élastique, comme mécanisme à l'origine de l'instabilité.

L'ensemble des systèmes présentés exhibent des réponses en contrainte très perturbées à haut cisaillement, notamment lors du changement de pente du plateau, suggérant une dynamique chaotique. Un de ces systèmes, CPCl/NaSal 6,3%, présente des signes caractéristiques du chaos (étudiés dans le chapitre *Chaos*).

Afin de poursuivre l'étude initiée sur le système CPCl/NaSal 10%, il serait intéressant de tester l'influence d'une grande hauteur de cellule, typiquement d'une dizaine de centimètres, sur ce phénomène. En effet, une plus grande hauteur de cellule pourrait limiter l'influence des conditions aux bords supérieur et inférieur de la cellule sur l'apparente déstructuration de l'écoulement en fin de plateau. Il serait intéressant d'observer si ce genre d'événements peuvent nucléer loin des bords pour produire de l'intermittence spatiotemporelle, comme celle observée dans l'instabilité de Taylor-Couette [66].

Dans le chapitre suivant, nous allons nous intéresser à l'étape précédant la déstabilisation : la nucléation de l'interface et sa migration vers sa position d'équilibre.

Chapitre 4

Nucléation de l'interface : comportement rhéo-optique transitoire

Nous avons vu que les solutions de micelles géantes ont une courbe d'écoulement composée de deux branches séparées par un unique plateau. Pour modéliser ce comportement, Olmsted et Radulescu [31,115] ont utilisé le modèle Johnson-Segalman [42] auquel a été ajouté un terme de diffusion de la contrainte viscoélastique permettant la sélection unique du plateau dans la courbe constitutive. Si l'introduction de ce terme non-local est nécessaire pour décrire la courbe d'écoulement de solutions de micelles géantes, il n'a encore été que très peu étudié expérimentalement.

Dans ce chapitre, nous reprenons l'étude expérimentale menée par Radulescu *et al.* [93] en 2003 sur la mesure du coefficient de diffusion de la contrainte dans les systèmes micellaires. Dans ce modèle, lors d'un saut en cisaillement, la plus grande échelle de temps correspond au déplacement de l'interface fine et plane vers sa position d'équilibre. Les résultats obtenus en 2003 donnaient un coefficient de diffusion de l'ordre de 10^{-14} m².s⁻¹, correspondant à une longueur de corrélation de la contrainte de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Nous avons montré au chapitre 3 que l'échelle de temps la plus longue correspond à la déstabilisation de l'interface. De plus, deux études récentes [119, 120] ont mesuré une longueur de corrélation, obtenue par deux techniques expérimentales différentes, de l'ordre du micron. À la lumière de ce fait expérimental nouveau, nous nous proposons de confronter les mesures faites à partir de l'observation du déplacement de l'interface et de sa déstabilisation, avec celles obtenues par Radulescu [93], Ballesta [119] et Masselon [120].

Dans un premier temps, nous présenterons le modèle de Dhont, sur lequel est basé l'étude menée par Masselon, ainsi que celui d'Olmsted et Radulescu, puis nous montrerons dans quelles conditions nous utiliserons ce dernier. Nous l'appliquerons à différents systèmes pour extraire le coefficient de diffusion de la contrainte.

4.1 Modèles constitutifs

4.1.1 Un modèle phénoménologique

Le modèle de Dhont [30] est un modèle phénoménologique d'écoulement entre deux plaques parallèles. La relation constitutive entre la contrainte Σ et le cisaillement est :

$$\Sigma(y) = \eta(\dot{\gamma}(y))\dot{\gamma}(y), \tag{4.1}$$

dans le cas d'un écoulement suivant x, la direction y est suivant le gradient de vitesse. Elle décrit la contribution à la contrainte pour un écoulement dans une géométrie infinie sans influence des conditions aux limites. La viscosité (η) dépend du cisaillement et est due à la friction entre les couches adjacentes de fluide. Cette friction dépend directement de l'organisation de la microstruture dans les couches adjacentes de fluide. La figure 4.1 extraite de [30] illustre l'organisation structurelle dans les couches avec des particules cylindriques.



FIGURE 4.1 – Représentation des couches de fluides adjacentes dans un écoulement entre deux plaques parallèles d'un système constitué de particules cylindriques de longueur ξ . (a) le cisaillement est constant sur une échelle de l'ordre de la longueur des particules cylindriques, (b) le cisaillement varie sur cette même échelle. Issue de la référence [30].

Dans le cas (b) où la variation du cisaillement est de l'ordre de ξ , l'orientation diffère entre couches voisines. Si le cisaillement moyen est le même dans les deux cas, la force de friction entre les couches est différente entre (a) et (b), parce que l'arrangement de la microstructure est différent. Pour rendre compte des variations spatiales d'orientation des particules entre deux couches adjacentes, il convient d'introduire un terme comportant une dérivée spatiale du cisaillement. Pour des raisons de symétrie, il convient d'introduire un terme additionnel invariant par inversion de l'axe y à l'équation 4.1 et elle s'écrit :

$$\Sigma(y) = R(\dot{\gamma}(y)) - \mathscr{D}\frac{\partial^2 \dot{\gamma}(y)}{\partial y^2}$$
(4.2)

Le terme $\mathscr{D}\frac{\partial^2\dot{\gamma}(y)}{\partial y^2}$ est un terme non-local qui traduit la continuité des propriétés du fluide à l'interface entre bandes fortement cisaillée et faiblement cisaillée. Pour modéliser un comportement rhéofluidifiant, il convient d'écrire $R(\dot{\gamma}(y))$ comme :

$$Pour \dot{\gamma}(y) < \dot{\gamma}_1, R(\dot{\gamma}(y)) = \eta \dot{\gamma}$$

$$\tag{4.3}$$

$$Pour \dot{\gamma}(y) > \dot{\gamma}_1, R(\dot{\gamma}(y)) = A\dot{\gamma}^n \tag{4.4}$$

Ce modèle est basé sur le taux de cisaillement et sa dérivée spatiale seconde, et dépend de la géométrie. Il propose une description phénoménologique simple de la transition en bandes de cisaillement, basée sur une argumentation physique de la contribution de la microstructure à la contrainte. L'introduction d'un terme non-local a permis la sélection unique du plateau et la continuité des propriétés rhéologiques à l'interface entre bandes de cisaillement, et a été également proposée avec le modèle Johnson-Segalman par Olmsted *et al* [115]. Ce modèle, sur lequel notre étude est basée, est un modèle tensoriel basé sur la description des contraintes viscoélastiques, sans considération microscopique. Il propose une alternative au modèle de Dhont.

4.1.2 Un modèle basé sur Johnson-Segalman

L'équation de Navier-Stokes s'écrit :

$$o(\partial_t + \underline{\mathbf{v}} \cdot \underline{\nabla}) \underline{\mathbf{v}} = \nabla \underline{\underline{\mathbf{S}}},\tag{4.5}$$

avec $\underline{\mathbf{v}}$ le champ de vitesse et $\underline{\mathbf{S}}$ le tenseur des contraintes totales,

$$\underline{\underline{\mathbf{S}}} = \underline{\underline{\mathbf{\Sigma}}} + 2\eta \underline{\underline{\mathbf{D}}} - P \underline{\underline{\mathbf{I}}},\tag{4.6}$$

 $\underline{\Sigma}$ est le tenseur des contraintes viscoélastiques dues aux micelles et \underline{D} le tenseur des déformations.

$$\rho(\partial_t + v_k \nabla_k) v_j = \nabla_i (\Sigma_{ij} + \eta (\nabla_i v_j + \nabla_j v_i) - p\delta_{ij})$$
(4.7)

où k et i sont des indices muets faisant partis de sommations implicites, la composante du tenseur des contraintes Σ_{ij} correspond à la composante i de la force appliquée sur la surface dont la normale est dirigée suivant j et $\eta(\nabla_i v_j + \nabla_j v_i)$ est la partie newtonienne du tenseur des contraintes due au solvant. En l'absence de micelles, $\Sigma_{ij} = 0$, l'équation du mouvement se réduit à l'équation de Navier-Stokes pour un fluide incompressible dans laquelle $v_k \nabla_k v_j$ est le terme inertiel non-linéaire. Cette non-linéarité est quantifiée par le nombre de Reynolds Re et disparaît dans la limite où Re tend vers 0. Dans notre cas, comme $Re \sim 10^{-4}$, les non-linéarités vont donc provenir du tenseur des contraintes viscoélastiques. Nous considérons un élément de fluide incompressible en l'absence d'inertie. La conservation de la masse et le bilan des forces s'écrivent alors :

$$\nabla \cdot \underline{\mathbf{v}} = 0, \tag{4.8}$$

$$\nabla \mathbf{\underline{S}} = \mathbf{0}.\tag{4.9}$$

Une des premières approches théoriques pour décrire la courbe d'écoulement constitutive d'un système présentant des déformations non-affines est due à Johnson et Segalman [42]. Dans leur modèle, la contrainte viscoélastique obéit à la loi de comportement :

$$\underbrace{\underline{\hat{\Sigma}}}_{\underline{\underline{M}}} = 2G_0 \underline{\underline{\underline{M}}} - \frac{1}{\tau} \underline{\underline{\Sigma}},\tag{4.10}$$

où $\underline{\sum}$ désigne la dérivée temporelle de Gordon-Schowalter du tenseur des contraintes viscoélastiques :

$$\stackrel{\Diamond}{\underline{\Sigma}} = (\partial_t + \underline{\mathbf{v}} \cdot \underline{\nabla}) \underline{\underline{\Sigma}} - a(\underline{\underline{\mathbf{D}}} \cdot \underline{\underline{\Sigma}} + \underline{\underline{\Sigma}} \cdot \underline{\underline{\mathbf{D}}}) - (\underline{\underline{\Sigma}} \cdot \underline{\underline{\mathbf{\Omega}}} - \underline{\underline{\mathbf{\Omega}}} \cdot \underline{\underline{\Sigma}})$$
(4.11)

avec $\underline{\mathbf{D}} = \frac{1}{2} (\nabla \underline{\mathbf{v}} + (\nabla \underline{\mathbf{v}})^{\mathbf{t}})$ et $\underline{\mathbf{\Omega}} = \frac{1}{2} (\nabla \underline{\mathbf{v}} - (\nabla \underline{\mathbf{v}})^{\mathbf{t}})$, respectivement les parties symétrique et antisymétrique du tenseur des gradients de vitesse. Les deux derniers termes de l'équation 4.11 sont respectivement les termes de translation et rotation. Les symboles en **gras** soulignés de deux barres désignent des **tenseurs**. Ici, a est le paramètre décrivant la non-affinité de la déformation, aussi appelé paramètre de « glissement ». Il peut prendre des valeurs comprises entre -1 et 1. Pour a=1, la déformation est affine. Cette loi tensorielle pose quelques problèmes. En effet, la résolution de l'équation 4.9 à l'état stationnaire [121] donne trois solutions qui permettent trois plateaux différents. Cette solution multivaluée ne correspond pas aux observations expérimentales : le plateau, signature rhéologique du phénomène de séparation en bandes de cisaillement observé pour la première fois par Rehage [5], existe de manière **unique** (fig. 2.6 gauche). Pour en rendre compte, il a fallu trouver un mécanisme assurant la sélection d'un plateau unique [29,31]. Le modèle proposé par Olmsted et Radulescu [31,93,115] est basé sur le modèle de Johnson-Segalman [42] auquel a été ajouté un terme de diffusion (encadré dans 4.12) :

$$\underbrace{\overset{\diamond}{\underline{\Sigma}}}{\underline{\Sigma}} = 2G_0 \underline{\underline{D}} - \frac{1}{\tau} \underline{\underline{\Sigma}} + \boxed{\mathscr{D}\vec{\nabla}^2 \underline{\underline{\Sigma}}}$$
(4.12)

où \mathscr{D} est un coefficient de diffusion de la contrainte viscoélastique, τ le temps caractéristique du système et G_0 le module plateau. Le modèle de Johnson-Segalman ainsi modifié permet la sélection de la contrainte du plateau pour un cisaillement pur [115, 122] de manière **unique** et conduit ainsi à une interface entre bandes de largeur finie. Ce dernier élément le distingue des modèles antérieurs pour lesquels l'interface était infiniment étroite [29]. Dans [93], les auteurs ont développés une méthode de calcul du coefficient de diffusion qui consiste à simuler numériquement un fluide cisaillé à $\dot{\gamma}_i$, puis subitement soumis à taux de cisaillement $\dot{\gamma}_j$ plus élevé. Cette simulation numérique, figure 4.2, montre un comportement en trois échelles de temps lors du saut du taux de cisaillement :

- 1. $0 < t < t_1$, l'échantillon est déstabilisé. La bande faiblement cisaillée, appelée I, est perturbée. La bande fortement cisaillée occupe presque l'intégralité de l'entrefer, figure 4.2 (a). Cela correspond à un *overshoot* dans la réponse en contrainte.
- 2. $t_1 < t < t_2$, l'interface entre bandes se construit. L'interface entre les bandes se reconstruit dans une position moins avancée dans l'entrefer, stabilise les bandes et accroît le contraste entre elles, figure 4.2 (b).
- 3. $t_2 < t < \infty$, l'interface migre jusqu'à sa position d'équilibre. L'interface se déplace dans l'entrefer avec une vitesse non nulle. La propagation de ce front sur une petite distance vers sa position d'équilibre est contrôlée par \mathscr{D} , figure 4.2 (c). La largeur de l'interface interbandes correspond à la largeur entre contrainte forte et faible sur 4.2 (c). Cette largeur reste constante au cours de la migration.



FIGURE 4.2 – Simulations numériques de la contrainte σ_{xy} (S) et des contraintes normales dues aux polymères (W) lors des trois étapes définies par le modèle : (a) déstabilisation de l'échantillon, (b) reconstruction de l'interface et (c) migration de l'interface vers sa position d'équilibre. Issue de [93].

4.1. Modèles constitutifs

Ce modèle dJS décrit un système en bandes de cisaillement 1D dont l'interface est plane. La réponse à un saut en cisaillement présente trois échelles de temps dont la plus longue est le temps de migration de l'interface vers sa position d'équilibre.

Considérons une interface fine à une position r dans l'entrefer. Nous partons de l'hypothèse que l'interface est complètement formée et plane. À un taux de cisaillement imposé $\dot{\gamma}$, la règle du levier (équation 4.13) permet de relier σ et r:

$$\dot{\gamma} = \frac{r}{e}\dot{\gamma}_2(\sigma) + \left(1 - \frac{r}{e}\right)\dot{\gamma}_1(\sigma), \qquad (4.13)$$

où e est la taille de l'entrefer, r la position de l'interface et $\dot{\gamma_1}, \dot{\gamma_2}$ sont respectivement les bornes inférieure et supérieure du plateau. En supposant que la vitesse de l'interface c dépend uniquement de la contrainte σ , on obtient l'équation du mouvement de l'interface :

$$\frac{dr}{dt} = c(\sigma(r)) \tag{4.14}$$

avec l'hypothèse que l'interface a une position d'équilibre r^* telle que $c(\sigma(r^*)) = 0$. En développant autour de r^* , on obtient :

$$c(\sigma(r)) = c(\sigma(r^*)) + \frac{dc}{dr}(r - r^*) + O(r - r^*)^2$$
(4.15)

$$\operatorname{et}\left(\frac{dc}{dr}\right)_{\dot{\gamma}} = \frac{dc}{d\sigma}\left(\frac{\partial\sigma}{\partial r}\right)_{\dot{\gamma}}.$$
 En dérivant l'équation 4.13 par rapport à r , on peut calculer $\left(\frac{\partial\sigma}{\partial r}\right)_{\langle\dot{\gamma}\rangle}:$

$$0 = \frac{\dot{\gamma}_2}{e} + \frac{r}{e} \frac{d\dot{\gamma}_2}{d\sigma} \left(\frac{\partial\sigma}{\partial r}\right)_{\langle\dot{\gamma}\rangle} - \frac{1}{e}\dot{\gamma}_1 + (1 - \frac{r}{e})\frac{d\dot{\gamma}_1}{d\sigma} \left(\frac{\partial\sigma}{\partial r}\right)_{\langle\dot{\gamma}\rangle},\tag{4.16}$$

d'où on déduit avec $\frac{1}{\eta_1} = \frac{d\dot{\gamma}_1}{d\sigma} \approx \frac{\dot{\gamma}_1}{\sigma^*}$ et $\frac{d\dot{\gamma}_2}{d\sigma} \approx \frac{\dot{\gamma}_2}{\sigma^*}$:

$$\left(\frac{\partial\sigma}{\partial r}\right)_{\dot{\gamma}} = -\frac{\eta_1 \dot{\gamma_1} \delta \dot{\gamma}}{e \dot{\gamma}},\tag{4.17}$$

avec $\delta \dot{\gamma} = \dot{\gamma}_2 - \dot{\gamma}_1$ la largeur du plateau, η_1 la viscosité à $\dot{\gamma}_1$. L'équation 4.17 a été trouvée pour une géométrie plane et est applicable à la géométrie Couette dans la limite d'un entrefer d'épaisseur négligeable devant le rayon intérieur. L'équation du mouvement de l'interface devient :

$$\frac{dr}{dt} = c(\sigma) = \frac{dc}{d\sigma} \left(\frac{\partial\sigma}{\partial r}\right)_{\langle\dot{\gamma}\rangle} (r - r^*), \qquad (4.18)$$

avec $\frac{d\sigma}{dc} = KG_0 \sqrt{\frac{\tau_{Maxwell}}{\mathscr{D}}}$ où K est un paramètre sans dimension dépendant du modèle constitutif, G_0 le module plateau, $\tau_{Maxwell}$ le temps de Maxwell de l'échantillon et \mathscr{D} le coefficient de diffusion de la contrainte [93]. En combinant les équations 4.17, 4.18, on trouve :

$$r(t) - r^* = (r(0) - r^*)e^{-t/t_{\text{migration}}}$$
(4.19)

avec

$$t_{\text{migration}} = \frac{\tau_{Maxwell} e K G_0 \dot{\gamma}}{\sqrt{\mathscr{D}} \tau_{Maxwell} \eta_1 \dot{\gamma}_1 \delta \dot{\gamma}}$$
(4.20)

On définira par la suite, et cela indépendamment de l'échantillon, $\frac{KG_0}{\eta_1\dot{\gamma_1}} \simeq 0, 3$ [93]. Le coefficient de diffusion est défini comme $\mathscr{D} = \frac{\zeta^2}{\tau_{Maxwell}}$, ce qui permet de le relier à la longueur de corrélation ζ de la contrainte.

Ce terme additionnel confère une largeur finie à l'interface contrairement au modèle JS simple, qui donne une interface d'épaisseur infiniment fine, non-physique [123]. Les modèles de dJS et de Dhont diffèrent par la forme du terme de diffusion introduit.

4.2 Estimation expérimentale du coefficient de diffusion de la contrainte

4.2.1 Phénomènes temporels transitoires

Dans cette section, nous nous proposons de reprendre l'étude de Radulescu *et al.* [93] dans laquelle le protocole expérimental utilisé pour extraire le coefficient de diffusion consiste à cisailler préalablement l'échantillon à un cisaillement sur le plateau jusqu'à l'état stationnaire, puis à lui imposer un nouveau cisaillement plus grand. Dans cette étude, les trois temps décrits par le modèle sont la destruction, la reconstruction et la migration de l'interface. L'échelle de temps la plus longue est la migration. Ces temps sont extraits de la réponse en contrainte.

Les observations optiques récentes de l'interface [4] ont montré trois échelles de temps : destruction - reconstruction, migration et déstabilisation de l'interface. L'échelle de temps de déstabilisation est plus longue que celle de migration. Ces nouvelles données expérimentales ont motivé notre choix de reprendre l'étude de 2003 [93]. Par ailleurs, de récentes mesures du coefficient de diffusion de la contrainte [119, 120] montrent une différence de trois ordres de grandeur par rapport aux valeurs mesurées expérimentalement dans [93].

D'après le modèle, pour que les échelles de temps entre les différentes étapes soient bien séparées, les conditions optimales à respecter sont : un pré-cisaillement proche du cisaillement d'entrée sur le plateau et une amplitude du saut en cisaillement petite devant la largeur de plateau. À l'origine, le pré-cisaillement avait pour but de limiter l'*overshoot* dans la réponse en contrainte pour les grands cisaillements imposés. En effet, plus le cisaillement est élevé, plus l'amplitude de l'*overshoot* est grande. Nous appellerons par la suite « palier » le pré-cisaillement $(\dot{\gamma})$ et « saut » la différence entre le pré-cisaillement et le cisaillement imposé $(\Delta \dot{\gamma})$.



FIGURE 4.3 – Diagrammes spatiotemporels pour deux sauts différents. (a) l'amplitude du saut de 10 à 40 s⁻¹ est suffisante pour détruire l'interface qui va se reformer durant le second cisaillement. (b) l'amplitude du saut de 20 à 30 s⁻¹ est insuffisante pour détruire l'interface créée lors du premier cisaillement.

Pour tester les conditions optimales proposées par le modèle, nous avons essayé un ensemble de sauts à partir de différents pré-cisaillements. Il ressort de nos observations deux types de comportement de l'interface dépendant du saut en cisaillement.

Dans le premier cas, si le saut est suffisamment grand devant le palier, l'interface créée sur le palier est détruite lors du saut, puis reconstruite, migre et se déstabilise. Le diagramme spatiotemporel 4.3 (a) présente ce comportement avec un saut de 10 à 40 s⁻¹. Au début de l'expérience, nous observons les étapes de reconstruction, migration et déstabilisation de l'interface. Sur la figure 4.4 gauche, nous avons représenté la réponse en contrainte et la position de l'interface en fonction du temps, correspondant au spatiotemporel 4.3 (a). Lors du pré-cisaillement, l'*undershoot* dans la réponse en contrainte est caractéristique du développement de l'instabilité. L'étape de migration est associée à une croissance linéaire de la contrainte, suivi de l'étape de déstabilisation associée à une croissance monoexponentielle de la contrainte vers l'état stationnaire. Ces étapes sont celles décrites au chapitre 3. Lors du saut, l'interface formée lors du pré-cisaillement est détruite. Les étapes de reconstruction, migration et déstabilisation de l'interface sont les mêmes que lors du pré-cisaillement. La deuxième étape observée est toujours l'étape de la migration, contrairement au modèle où la migration est la dernière étape. Durant l'expérience, nous enregistrons simultanément la réponse en contrainte et la position moyenne de l'interface dans l'entrefer en fonction du temps (figure 4.4 droite). Pendant l'étape de migration, la position de l'interface varie en exponentielle décroissante. Les petites oscillations de la position moyenne et du signal en contrainte ont la même période que la rotation imposée et sont dues à la légère non-coaxialité du cylindre tournant (comprise entre 5 et 20 μ m).

En revanche, dans le deuxième cas, si le saut est trop petit devant le palier, on n'observe pas de destruction de l'interface lors du saut, comme lors du saut de 20 à 30 s^{-1} (diagramme 4.3 (b)). L'étape de reconstruction n'ayant pas lieu, on n'observe pas de migration d'une interface fine et plane, mais une migration de l'interface déstabilisée vers le cylindre fixe. Le profil de l'interface adapte sa longueur d'onde et son amplitude au nouveau cisaillement (diagramme spatiotemporel 4.3 (b)).



FIGURE 4.4 – À gauche, nous avons tracé en bleu la réponse en contrainte et en noir la position moyenne de l'interface sur toute la durée de l'expérience. À droite, réponse en contrainte lors du saut de 10 à 40 s⁻¹ à partir de 240 s. L'ajustement des données avec l'équation 4.19 est présenté en trait plein rouge.



FIGURE 4.5 – Réponse en contrainte de l'échantillon pour un saut de 20 à 30 s⁻¹. L'interface créée lors du cisaillement à 20 s⁻¹ n'est pas détruite pendant le saut, mais migre vers le stator tout en étant déstabilisée. Durant le transitoire induit par le saut, la longueur d'onde s'adapte au niveau cisaillement imposé. Cela se traduit par l'absence d'undershoot dans la réponse à 30 s⁻¹, l'instabilité étant déjà installée et développée.

FIGURE 4.6 – Diagramme des phases du palier ($\dot{\gamma}$) en cisaillement en fonction du saut ($\Delta \dot{\gamma}$). Nous distinguons deux régions où le comportement de l'interface est différent. Dans la région 1, le saut n'est pas suffisamment grand pour détruire l'interface formée lors du palier. Pour la région 2, le saut est suffisant pour détruire l'interface. La région grisée indique la région où les deux comportements sont difficiles à différencier. En pratique, nous devons nous situer en dehors de cette région limite.

La réponse en contrainte associée à cette expérience présente la signature mécanique de l'instabilité lors du pré-cisaillement, tandis qu'elle disparaît lors du saut (figure 4.5). De manière générale, si le saut n'est pas suffisant pour détruire l'interface, alors la signature mécanique de l'instabilité disparaît de la réponse en contrainte lors du saut.

La figure 4.6 présente le diagramme des phases du comportement de l'interface lors du saut en cisaillement. Nous avons tracé le pré-cisaillement ($\dot{\gamma}$) en fonction du saut ($\Delta \dot{\gamma}$). La courbe noire représente la frontière entre les deux comportements : dans la région 2, le saut est suffisamment grand pour que l'interface soit détruite, tandis que dans la région 1, le saut est trop faible et l'interface n'est pas détruite, et elle migre déstabilisée vers le stator. En pratique, nous devons nous placer dans la région 2, loin de la zone frontière (en dehors de la région en gris sur la figure 4.6) pour observer clairement les étapes de destruction-reconstruction, migration et déstabilisation de l'interface.

Lorsque le saut est suffisamment grand, nous observons trois temps de destruction - reconstruction, migration et déstabilisation de l'interface. De ces observations, nous parvenons à deux divergences par rapport au modèle. La première est que l'étape de migration n'est pas l'échelle de temps la plus longue, mais la deuxième étape. L'échelle de temps de migration est d'une durée finie, dont la limite supérieure est marquée par le temps de déstabilisation de l'interface. La deuxième est que les sauts de petites amplitudes devant la largeur de plateau ne sont pas une condition optimale. Lors d'un petit saut, d'une part, l'interface n'est pas détruite et recontruite, et d'autre part, les échelles de temps de migration et déstabilisation ne sont pas séparées. Dans l'étude de 2003 [93], le coefficient de diffusion n'a donc pas été calculé à partir de l'étape de migration. De plus, les expériences menées lors de cette étude ont été faites avec de petits sauts, mélangeant ainsi les échelles de temps de migration et déstabilisation de l'interface.

Nous avons constaté que lors des pré-cisaillements, nous retrouvons les étapes de construction, migration et déstabilisation de l'interface. Pour déterminer le coefficient de diffusion, nous avons naturellement choisi de faire des expériences avec un saut en cisaillement depuis le repos, ce protocole étant simple à mettre en oeuvre.



FIGURE 4.7 – À gauche : Série d'images de l'entrefer pour CTAB/NaNO₃ à 28°C à un cisaillement de 30 s⁻¹. Le cylindre tournant intérieur est à gauche, le cylindre fixe à droite des images. À droite : Profils d'intensité lumineuse moyennée sur la hauteur d'observation, en fonction de la position dans l'entrefer sur les 30 premières secondes du cisaillement imposé de 30 s⁻¹. Le dégradé de bleu correspond à t = 0 s pour le noir et t = 30 s pour le bleu cyan. La position 0 marque la position du cylindre intérieur tournant et la position 1,13 celle du cylindre fixe.



FIGURE 4.8 – Réponse en contrainte en bleu lors du saut du repos à 30 s^{-1} à partir de 0 s. La courbe rouge est l'ajustement des données de la courbe noire avec l'équation 4.19.

La figure 4.7 présente un saut depuis le repos à 30 s⁻¹. Nous retrouvons les échelles de temps en optique sur la figure 4.7 de gauche. Sur cet exemple, l'interface est fine, plane et migre jusqu'à sa position d'équilibre de 7 à 27,2 s. La figure 4.7 de droite montre l'intensité lumineuse diffusée dans l'entrefer. Elle est moyennée sur la hauteur d'observation pour limiter le bruit. Nous observons l'affinement de l'interface par l'augmentation de la pente dans le profil de luminosité entre les bandes turbide et non-turbide. Lorsque la pente maximum est atteinte, l'interface se déplace vers le rotor (à gauche sur ce graphique) jusqu'à sa position d'équilibre où elle finira par se déstabiliser.

L'évolution de la position de l'interface durant sa migration est en exponentielle décroissante (figure 4.8). En ajustant la position de l'interface avec l'équation 4.19, on extrait le temps caractéristique de la migration. Ce temps est relié au coefficient de diffusion de la contrainte par la relation 4.20 et va permettre son estimation. Ces relations sont basées sur la règle du levier, qui doit donc être respectée pour appliquer le modèle. Cette règle est respectée comme nous l'avons vu au chapitre précédent (figure 3.2).

Pour estimer la vitesse caractéristique de l'interface, nous réécrivons l'équation 4.19 comme [119] :

$$r(t) = (r(0) - r^*)e^{-2c_0t/R_1} + r^*, (4.21)$$

avec $c_0 = \frac{R_1}{2t_{mig}}$ est la vitesse caractéristique du déplacement de l'interface. En ajustant les données avec l'équation 4.21, on trouve que la vitesse caractéristique de l'interface pour cette expérience est : $c_0 = 1,65 \pm 0,07 \text{ mm.s}^{-1}$. La barre d'erreur est l'écart type entre les données et l'ajustement de l'équation 4.21. Dans [119], les auteurs trouvent $c_0 = 0,28 \pm 0,03 \text{ mm.s}^{-1}$ sur CPCl/NaSal 6% à 21°C ce qui n'est pas surprenant, car la dynamique de ce système est bien plus lente que CTAB/NaNO₃.

Les résultats des ajustements pour différents protocoles avec l'équation 4.19 sont présentés sur la figure 4.9. Sur cette figure, les valeurs du coefficient de diffusion de la contrainte sont de l'ordre de 10^{-10} m².s⁻¹, ce qui est très différent de ce qui avait été trouvé précédemment dans [93], où il était de l'ordre de 10^{-14} m².s⁻¹. En séparant les échelles de temps de migration et déstabilisation, le résultat des ajustements est foncièrement différent. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus dans [82] où les auteurs ont travaillé avec ce même modèle. De plus, une étude menée sur des écoulements droits en microcanal [120], basée sur le modèle de Dhont [30] (évoqué en 4.1.1) et sur le système CTAB(0,3M)/NaNO₃(0,405M) à 25°C, montre une longueur de corrélation comprise entre 3 et 8 μ m. Ces résultats sur la longueur de corrélation de la contrainte sont en accord avec ceux que nous avons obtenus.

La longueur de corrélation de la contrainte trouvée ici est de l'ordre du micron (figure 4.9). La taille de maille du système, donnée par $\xi \sim \left(\frac{k_B T}{G_0}\right)^{\frac{1}{3}}$ [39,40,124], est de 26 nm sur ce système. Trois ordres de grandeur les séparent, montrant que la taille de maille n'est pas corrélée à la longueur de corrélation de la contrainte. La longueur de corrélation de la contrainte pourrait être reliée à des objets de taille micronique. Ces objets seraient à l'origine de la turbidité et pourraient être responsable des fluctuations de concentrations observées en lumière blanche.

Afin de tester l'influence de la géométrie sur la mesure du coefficient de diffusion de la contrainte, nous avons choisi de faire varier la hauteur de la cellule et le rayon intérieur. Quelle que soit la hauteur de la géométrie, la règle du levier est respectée (voir figure 3.13). Les coefficients de diffusion obtenus pour les hauteurs de 3 et 2 cm sont similaires à ceux obtenus avec la géométrie de 4 cm (figure 4.10). La hauteur de la cellule n'a pas d'influence sur le coefficient de diffusion. Notons qu'il ne nous a pas été possible de mesurer le coefficient de diffusion avec la hauteur de 1 cm en raison des perturbations des bords, ainsi que de la déformation de l'interface aux



FIGURE 4.9 – Coefficient de diffusion (à gauche) et longueur de corrélation de la contrainte (à droite) en fonction du cisaillement normalisé par le temps de Maxwell de CTAB/NaNO₃ à 28 °C. Les sauts depuis le repos et ceux depuis un cisaillement semblent en assez bon accord.



FIGURE 4.10 – Comparaison des coefficients de diffusion obtenus avec des cellules de hauteur 2, 3 et 4 cm. Les résultats sont similaires. La hauteur de la géométrie n'influence pas le coefficient de diffusion.

bords supérieur et inférieur de la cellule (« pincement » de la phase induite évoqué au chapitre précédent).

Nous n'avons pas pu mesurer le coefficient de diffusion en faisant varier le rayon intérieur, car il nous a été impossible d'évaluer la borne supérieure du plateau $\dot{\gamma}_2$ pour ces géométries en raison de l'important effet des contraintes normales.

4.2.2 Application à d'autres systèmes de micelles

Dans cette section, nous appliquons la même méthode d'observation optique et d'extraction du coefficient de diffusion aux systèmes de micelles géantes CTAB/KBr à 34°C, CPCl/NaSal 8 et 10% à 22°C. Ces trois systèmes présentent eux aussi les trois étapes rhéo-optique décrites précédemment.

Le système CTAB/KBr respecte la règle du levier [93]. Son plateau est étendu sur une grande gamme de cisaillements (500 s⁻¹). De plus, si le comportement optique de l'interface en trois étapes reste le même que CTAB/NaNO₃, la dynamique de celle-ci est plus rapide.

La vites se caractéristique de l'interface pour l'expérience à 90 s^{-1} est de $4,56\pm0,11~{\rm mm.s^{-1}}.$ La dynamique de ce système est bien plus rapide que $CTAB/NaNO_3$: la migration a lieu plus tôt et la vitesse de déplacement de l'interface est plus grande. Sur la figure 4.13, le coefficient de diffusion et la longueur de corrélation de la contrainte sont du même ordre de grandeur que celui de $CTAB/NaNO_3$. Ici encore la taille de maille du système au repos est de 26 nm alors que la longueur de corrélation de la contrainte est micronique.

Nous nous sommes intéressés à un autre système de tensio-actifs pour vérifier s'il a le même comportement de l'interface et si le modèle lui est applicable. Son comportement dépend fortement de la concentration massique totale. En effet, pour les concentrations 8 et 10%, le CPCl/NaSal présente les trois étapes de reconstruction, migration et déstabilisation de l'interface. En revanche, les autres concentrations testées (6,3 12 et 14%) ont un comportement optique trop complexe, ne permettant pas de séparer les échelles de temps.

Le CPCl/NaSal 8% respecte également la règle du levier (figure 4.11) nous permettant d'appliquer le modèle tandis que le CPCl/NaSal 10% ne la respecte pas. La violation de la règle du levier pourrait être due au glissement à la paroi intérieure du fluide. En effet, du glissement a été mis en évidence par mesure du profil de vitesse sur les systèmes CTAB/D₂O [28, 125] et CPCl/NaSal [126].



FIGURE 4.11 – Règle du levier pour CPCl/NaSal 8% en trait pointillé et 10% en trait plein à 22°C. La proportion de phase induite pour le 8% (\circ) semble suivre cette règle, tandis que pour 10% (\bullet), la proportion est bien plus faible que celle attendue.

FIGURE 4.12 – Réponse en contrainte de CPCl/NaSal 8% à un cisaillement à 10 s^{-1} . L'ajustement des données (courbe noire) avec l'équation 4.19 est tracé en rouge.

4.2. Estimation expérimentale du coefficient de diffusion de la contrainte

La figure 4.12 présente la réponse en contrainte et la position de l'interface lors d'un saut du repos à 10 s⁻¹ sur CPCl/NaSal 8%. La vitesse caractéristique de migration de l'interface sur l'expérience à 10 s⁻¹ est de 0,45 ± 0,01 mm.s⁻¹. Nous obtenons un coefficient de diffusion de l'ordre de 10⁻¹¹ m².s⁻¹ et une longueur de corrélation est ici comprise entre 3 et 11 microns (figure 4.13). La taille de maille du système au repos est de 32 nm. Ces résultats sont les mêmes que ceux de Ballesta *et al.* [119] sur CPCl/NaSal 6 et 8% à 21°C avec le même modèle où \mathscr{D} est de l'ordre de 10⁻¹¹ m².s⁻¹ et $\zeta = 2, 3\mu$ m. L'étude menée sur une concentration voisine sur CPCl/NaSal 6% à 22°C [120] trouve une longueur de corrélation de la contrainte comprise entre 3 et 22 μ m parfaitement compatible avec nos résultats bien que dans notre cas la valeur supérieure de cette longueur soit quelque peu plus petite.

Le CPCl/NaSal 10% va permettre de comparer l'effet d'une variation de la concentration en tensio-actifs sur la diffusion. Bien que ne respectant pas la règle du levier, nous avons tout de même décidé d'appliquer notre méthode et de vérifier la cohérence des résultats avec ceux obtenus sur le CPCl/NaSal 8%.



FIGURE 4.13 – Comparaison des coefficients de diffusion (à gauche) et longueurs de corrélation de la contrainte (à droite) pour les quatre systèmes étudiés.



FIGURE 4.14 – Évolution du temps de migration pour les différents systèmes étudiés. Ces temps de migration sont extraits par l'ajustement d'une exponentielle avec la position de l'interface. Ils semblent indépendants du cisaillement pour tous les systèmes. Les échelles de temps sont très différentes selon les systèmes : de l'ordre de la seconde pour CTAB/KBr, de la dizaine de secondes pour CTAB/NaNO₃ et de la vingtaine de secondes pour les CPCl/NaSal. Le CPCl/NaSal 10% présente une longueur de corrélation de la contrainte comprise entre 0,75 et 3,3 μ m (figure 4.13). Comme pour les autres systèmes, la taille de maille au repos (ici 28 nm) est très petite devant la longueur de corrélation. Si on compare cette longueur de corrélation de la contrainte aux résultats obtenus sur CPCl/NaSal 6% [120] et 8 %, on constate que cette longueur semble décroître lorsque la concentration augmente.

La figure 4.13 présente les résultats, obtenus et moyennés sur trois essais pour différents cisaillements, pour le coefficient de diffusion et la longueur de corrélation de la contrainte. Ils sont donnés en fonction du cisaillement normalisé par le temps de Maxwell propre à chaque échantillon. En dehors du système CTAB/NaNO₃ (voir figure 4.13), les autres systèmes ont une évolution relativement proche et semblent suivre un comportement générique.

Pour mieux s'en rendre compte, nous avons tracé le temps de migration normalisé par la largeur de plateau propre $(t_{mig}\delta\dot{\gamma})$ en fonction du cisaillement normalisé par le temps de Maxwell propre $(\dot{\gamma}\tau_{Maxwell})$ (figure 4.14). Il ressort qu'à l'exception de CTAB/NaNO₃, CPCl/NaSal et CTAB/KBr semblent suivre un comportement commun.

4.3 Conclusion

Contrairement à l'étude précédente [93], nous prenons en compte la déstabilisation de l'interface et séparons cette échelle de temps de celle de la migration. En ajustant le modèle avec les données durant cet intervalle de temps, nous trouvons que pour les CTAB le coefficient de diffusion est de l'ordre de 10^{-10} m².s⁻¹ et pour les CPCl de l'ordre de 10^{-11} m².s⁻¹. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par d'autres équipes [119,120]. La taille de maille est trois ordres de grandeur plus petite que la longueur de corrélation. Nous ne sommes pas en mesure de relier la longueur de corrélation de la contrainte avec une grandeur du système. Nous avons également vu qu'en augmentant la concentration, la longueur de corrélation semble diminuer. Bien que ne respectant pas la règle du levier, les valeurs trouvées sur le CPCl/NaSal 10% semblent en accord avec le 8% et avec les résultats de Masselon [120] trouvés sur le 6% et ceux de Ballesta [119] sur 8%. La table 4.1 résume les résultats obtenus pour la longueur de corrélation de la contrainte.

| Échantillon | T (°C) | $\xi = (\frac{k_B T}{G_0})^{\frac{1}{3}} (\text{nm})$ | $\zeta \; (\mu { m m})$ | \mathscr{D} (m ² .s ⁻¹) |
|------------------------|--------|---|-------------------------|--|
| CTAB/NaNO ₃ | 28 | 26 | 2,4-18 | $\sim 10^{-10}$ |
| CTAB/KBr | 34 | 26 | 2,85-11,8 | $\sim 10^{-10}$ |
| CPCl/NaSal 8% | 22 | 32 | 3,2-11,5 | $\sim 10^{-11}$ |
| CPCl/NaSal 10% | 22 | 28 | $2,\!25\text{-}4,\!5$ | $\sim 10^{-11}$ |

TABLE 4.1 – Résumé des résultats obtenus sur les différents systèmes.

Les systèmes CPCl/NaSal 6,3, 12 et 14% à 22°C présentent une interface au comportement trop complexe pour rentrer dans nos schémas simples. La richesse de ces comportements empêche donc la mesure d'un coefficient de diffusion.

L'origine de longueurs de corrélation aussi importantes dans ces systèmes n'est pas élucidée. Les mesures de diffusion de lumière aux petits angles réalisées par Kadoma *et al.* [102] et Schubert *et al.* [96] sur des systèmes micellaires semi-dilués pourraient donner une piste. En effet, ils ont montré que sous écoulement, des figures de diffusion anisotropes en forme de « papillons » apparaissent. D'après les auteurs, ces résultats suggèrent que ces figures de diffusion sont dues à des fluctuations de concentration de la taille du micron, générées par l'écoulement [100]. Ce résultat serait compatible avec les longueurs de corrélation microniques observées sur les systèmes CTAB/NaNO₃, CTAB/KBr et CPCl/NaSal. De plus, ces fluctuations de concentration seraient à rapprocher des fluctuations d'indice optique que nous avons observées sur ces systèmes au chapitre précédent. Des mesures par diffusion de lumière aux petits angles sur les systèmes étudiés dans cette thèse seraient intéressantes pour poursuivre ce travail.

Pour explorer l'origine de ces longueurs de corrélation microniques, il serait important d'observer la structure des échantillons. La cryofracture est une piste expérimentale intéressante. Elle permet de figer un matériau afin de viualiser sa structure [127]. Cette technique permet de distinguer des objets de la taille de la dizaine de nanomètres. En figeant un échantillon venant d'être cisaillé, il serait possible, compte tenu du temps relativement important de relaxation des fluctuations d'indice optique (~ 1 min.), d'observer les structures à l'origine d'une telle longueur de corrélation. L'idéal serait de réaliser une expérience en figeant l'échantillon durant son écoulement. La congélation de l'échantillon par cryofracture ne pouvant s'effectuer que sur une faible quantité d'échantillon, l'écoulement en microcanal serait une technique expérimentale adaptée pour réaliser ce type d'expérience. Néanmoins, à notre connaissance, la cryofracture sous écoulement n'a jamais été réalisée.

Chapitre 5

Chaos

Ce chapitre présente des résultats préliminaires sur la dynamique très singulière du système CPCl/NaSal 6,3% à 22°C en fin plateau. Sur l'ensemble des systèmes étudiés, à mesure que l'on augmente le cisaillement, nous avons vu que la réponse en contrainte devient de plus en plus bruitée. Ce changement de comportement de la réponse apparaît généralement en fin de plateau et suggère une dynamique chaotique. Nous tentons de comprendre ce qui se produit lors de ces fluctuations en contrainte.

5.1 Qu'est-ce que le chaos?

5.1.1 Introduction

Un système dynamique est un système évoluant de manière causale et déterministe au cours du temps, c'est-à-dire que son état futur est unique et prédictible à partir de son état présent ou passé. Pour définir un système dynamique, il faut une représentation d'état dans l'*espace* des états (encore appelé espace des phases) et une fonction de transition. Cette représentation décrit l'état du système dans le domaine spatial. Il s'agit d'une liste de variables d'état, que l'on appelle vecteur d'état, permettant de décrire le système à tout instant. Le nombre de variables indépendantes correspond au nombre de *degrés de liberté* du système.

La fonction de transition décrit les interactions entre les objets composant le système et donne l'évolution du vecteur d'état entre deux instants t et $t + \Delta t$. Elle n'est généralement pas connue dans les systèmes complexes comportant un grand nombre d'objets.

Le terme « chaos » est utilisé pour décrire un comportement erratique, irrégulier dans le temps et l'espace du système, ne présentant apparemment plus d'ordre. En d'autres termes, si un système est chaotique, alors il n'est pas possible de calculer avec précision son évolution à partir de conditions initiales connues au-delà d'un temps donné. On parle de comportement chaotique lorsque le système est très sensible aux conditions initiales : deux trajectoires initialement infiniment voisines dans l'espace des états divergent en un temps fini. Ce temps peut être évalué par la méthode de Lyapunov qui consiste à mesurer le taux de divergence de deux trajectoires initialement proches. Pour comprendre comment évolue un système dynamique, il faut tracer l'attracteur du système. On désigne par le terme d'attracteur du système dynamique la représentation des trajectoires décrites par le système dans l'espace des phases. Un système dynamique ne peut être chaotique que s'il possède au moins trois degrés de liberté [128]. Lorsque le nombre de degrés de liberté est important, le système peut devenir chaotique, dans ce cas l'attracteur est appelé attracteur étrange. La figure 5.1 présente les quatre types d'attracteurs rencontrés :


FIGURE 5.1 – Sur la figure de gauche, les différents types d'attracteurs sont représentés : (1) l'attracteur vers un point fixe, (2) l'attracteur périodique ou cycle limite marque l'oscillation du système autour d'un point fixe, (3) attracteur d'un système quasi-périodique de deux fréquences propres, l'ensemble des trajectoires prennent la forme d'un tore, (4) l'attracteur étrange de Lorenz est caractérisé par le fait que l'on ne peut prédire les trajectoires du système qui ne sont jamais empruntées plus d'une fois par le système. La figure de droite représente l'attracteur étrange de Lorentz. Figures issues de http://www.umh.ac.be/fsmathematique.html.

(1) L'attracteur est un *point fixe* dans l'*espace des phases*, le système part d'un point de l'espace des phases et revient à l'équilibre. Par exemple, la trajectoire d'une bille roulant vers le fond d'une vallée va atteindre le minimum d'énergie correspondant à l'attracteur qui dans ce cas est un *point fixe* dans l'*espace des phases*.

(2) Quel que soit le point de départ dans l'espace des phases, le système revient sur l'attracteur périodique, le système oscille autour d'un point fixe. Lorsque le système se maintient sur cette trajectoire sur une durée indéfinie, on dit qu'il atteint un *cycle limite*.

(3) l'attracteur bipériodique, représenté par un tore, est l'ensemble des trajectoires d'un système dit *quasi-périodique*, car il posséde deux fréquences propres.

(4) un exemple d'attracteur étrange est l'attracteur de Lorenz, les trajectoires empruntées par le système ne sont jamais les mêmes.

Chaque attracteur possède son propre « bassin d'attraction », qui est un ensemble de conditions initiales pour lesquelles la trajectoire se dirige irrémédiablement vers cet attracteur.

Un système dynamique possède en général un ou plusieurs paramètres de contrôle. La modification continue de la valeur du paramètre de contrôle peut conduire à une modification de la nature des régimes dynamiques observés. La transition vers le chaos est marquée par des changements, appelés *bifurcations*.

Il existe plusieurs méthodes pour mettre en évidence le chaos : une des plus simples à mettre en oeuvre est la « route » vers le chaos, les autres étudient les attracteurs. La route vers le chaos, aussi appelée transition vers le chaos, est l'ensemble des bifurcations nécessaires pour passer d'un état stationnaire à un état chaotique. La notion de bifurcation est extrêment importante en théorie des systèmes dynamiques. On dit qu'il se produit une bifurcation lorsque la topologie de l'attracteur change en variant les paramètres de contrôle.

Un exemple simple de bifurcation est le mouvement d'un oscillateur entretenu [129] :

$$\ddot{\theta} = \gamma \left(1 - \frac{\theta^2}{\theta_0^2} \right) \dot{\theta} - \omega^2 \theta, \tag{5.1}$$

5.1. Qu'est-ce que le chaos?

avec θ l'amplitude des oscillations et θ_0 une amplitude donnée. En adimensionnant l'amplitude θ par $\theta_0 \sqrt{\frac{\omega}{\gamma}}$ et le temps par $\frac{1}{\omega}$, le système 5.1 s'écrit sous la forme suivante, appelée équation de Van der Pol :

$$\begin{cases} \dot{x} = y, \\ \dot{y} = (\epsilon - x^2) y - x, \end{cases}$$
(5.2)

où l'on a posé $x = \theta$, $y = \dot{\theta}$ et $\epsilon = \frac{\gamma}{\omega}$. Lorsque $\epsilon < 0$, l'état asymptotique est un point fixe dans l'espace des états (voir figure 5.2 (a)). Lorsque $\epsilon > 0$, la solution stationnaire est instable, les variables x et y oscillent alors à une fréquence déterminée, la topologie de l'attracteur est alors un cycle limite (voir figure 5.2 (b)). Le passage de $\epsilon < 0$ à $\epsilon > 0$ est une bifurcation. La dimension de l'attracteur change lorsqu'un paramètre du système dynamique a été varié continûment. Le passage d'un état stationnaire à un état périodique correspond à une bifurcation appelée bifurcation de Hopf, comme c'est le cas dans cet exemple. Notons que c'est la présence de non-linéarités dans 5.2 qui permet l'existence des bifurcations.



FIGURE 5.2 – Exemples de bifurcation dans le cas de l'équation de Van der Pol : (a) relaxation vers un point fixe pour ϵ =-0,08, (b) relaxation vers un cycle limite pour ϵ =0,05. Figure empruntée à la référence [61].

5.1.2 Bifurcation de Hopf

Le passage d'un état stationnaire ou point fixe à un cycle limite est appelé bifurcation de Hopf. Il existe deux types de bifurcations de Hopf :

- 1. Lorsque le paramètre de contrôle est supérieur à un seuil critique, le point fixe perd sa stabilité et évolue vers une solution périodique. Dans le cas où la transition vers un cycle limite est continue, on parle de bifurcation de Hopf super-critique (figure 5.3 (a)).
- 2. Lorsque pour une gamme de valeurs du paramètre de contrôle, deux solutions coexistent (point fixe instable et cycle limite stable), on observe, lors de la variation continue du paramètre de contrôle autour du seuil de l'instabilité, un cycle d'hystérèse. La bifurcation de Hopf est alors qualifiée de sous-critique (figure 5.3 (b)).

L'apparition de bifurcations dans un système mène à des dynamiques plus complexes.



FIGURE 5.3 – Deux types de bifurcations de Hopf : (a) bifurcation de Hopf super-critique, les traits en pointillés correspondent à des solutions instables et les lignes à des solutions stables. (b) bifurcation de Hopf sous-critique, pour lequel un cycle d'hystérèse est observé (représenté par les flèches).

5.1.3 Les scénarios de transition vers le chaos

Il existe plusieurs scénarios de transition vers le chaos [130, 131]. Selon Landau, chaque nouvelle bifurcation introduit un nouveau mode incommensurable avec l'ensemble des fréquences déjà actives. Le mouvement est multi-périodique et le chaos est obtenu par une cascade indéfinie de bifurcations de Hopf (fig. 5.4 en haut).

Un autre scénario, proposé par Ruelle et Takens, montre qu'après un petit nombre de bifurcations, des régimes chaotiques apparaissent pour des fréquences instables associés à des attracteurs étranges (fig. 5.4 en bas). Les orbites d'un attracteur étrange ont pour caractéristique de n'être ni périodiques, ni quasi-périodiques mais apériodiques.



FIGURE 5.4 – Scénarios de transition vers le chaos, en haut, de Landau, et en bas, de Ruelle-Takens. Figure empruntée à la référence [131].

Enfin, un troisième scénario, dû à Pomeau et Manneville, suggère que la transition vers le chaos se produisant entre un attracteur périodique et un attracteur étrange passe par de l'intermittence temporelle. Ce processus voit des discontinuités dans le signal d'une observable d'un système s'introduire spontanément. Lors de ces discontinuités, l'attracteur ne reste pas dans le voisinage de l'ensemble limite mais se met à « vagabonder » dans l'espace des phases. Une fois retombé dans le voisinage de l'ancien attracteur, le système s'en écarte et ainsi de suite. D'où une alternance qualifiée d'intermittente entre des phases laminaires rappelant le comportement

5.1. Qu'est-ce que le chaos?

observé avant la bifurcation et des bouffées « chaotiques ». Ce scénario est appelé transition par intermittence. D'après [131], il existe trois types d'intermittence. Le type I est caractérisé par un signal oscillant autour d'un point fixe de manière symétrique. Le type II est caractérisé par une distribution de la durée des phases laminaires en loi de puissance d'exposant -2 aux temps courts et en exponentielle décroissante aux temps longs [25, 130]. Le type III d'intermittence comporte un mode sous-harmonique avec une amplitude grandissante. Un mode sous-harmonique est un mode dont la période est un multiple entier de la période principale. L'apparition de ce mode sous-harmonique se traduit par l'apparition dans un signal périodique (de période T) d'une seconde période, multiple de deux de la période du mode principal.

Il existe également de l'intermittence spatiotemporelle qui peut se développer dans les systèmes étendus. L'exemple le plus connu dans la littérature d'intermittence spatiotemporelle, est l'intermittence sur l'instabilité thermique de *Rayleigh-Bénard* [129]. L'expérience classique consiste à chauffer une couche fluide disposée entre deux plaques à différentes températures (la plaque chauffante est en bas), ce qui est à l'origine de mouvements de convection. Cette instabilité développe donc des cellules de convection. Dans ce cas, en variant le paramètre de contrôle, le système passe par une transition d'un régime stationnaire où les cellules sont de taille fixe et ne se déplacent pas, à un régime périodique où les cellules oscillent, puis à un régime d'intermittence spatiotemporelle et enfin à un régime turbulent. Lors du régime d'intermittence, un désordre local apparaît. En certaines zones, il n'y a plus de structure cohérente et l'écoulement est désordonné. Ces zones sont de tailles très variables et apparaissent aléatoirement dans le temps et l'espace. En régime turbulent, ces cellules sont détruites dans l'ensemble de l'échantillon et l'écoulement semble globalement désorganisé.

5.1.4 Observations expérimentales du rhéochaos

Dans cette section, nous présentons quelques systèmes présentant des comportements de type rhéochaos. Dans de nombreux systèmes, le phénomène de bandes de cisaillement s'accompagne de variations non-périodiques de la contrainte à cisaillement imposé. Ce phénomène, appelé rhéochaos, se manifeste pour des nombres de Reynolds proches de zéro. Il a été tout d'abord observé par Bandyopadhyay et al. [24] sur un système de micelles de tosylate de cetyltrimethylammonium (CTAT) dans une solution salée avec du chlorure de sodium (NaCl). Ce système présente un plateau rhéofluidifiant pour des concentrations massiques comprises entre 1,3 et 20% [24, 106, 132]. Ganapathy et Sood ont mis en évidence dans la référence [133] l'existence de chaos déterministe de basse dimensionnalité se traduisant par des fluctuations erratiques dans les réponses temporelles. Ils ont également trouvé un exposant maximum de Lyapunov positif (défini à la section 5.2.2). Dans une étude plus récente [134], Ganapathy et Sood ont montré que le système CTAT 2% dans de l'eau salée à 50 mM transite vers le chaos via l'intermittence en variant le cisaillement. À bas cisaillements, le signal est périodique (figure 5.5 e), puis quasi-périodique avec deux fréquences (figure 5.5 f et g), intermittent (figure 5.5 h) et enfin chaotique (figure 5.5 i). Ils trouvent que la force normale suit le même type de variation.

Dans [25, 133, 134], les bouffées chaotiques sont suffisamment nombreuses pour permettre de mesurer la distribution des durées des phases laminaires entre les bouffées. Cette distribution est exponentielle décroissante, ce qui est une signature d'une intermittence de type II d'après [130]. De plus, leur signal intermittent est précédé par un signal pseudo-périodique (bi-périodique) ce qui suggère que le fluide emprunte la route vers le chaos via une intermittence de type II.

Le rhéochaos a également été observé dans d'autres systèmes tels que des solutions mixtes anioniques-zwitterioniques [135], un système rhéoépaississant de micelles [136], dans les phases lamellaires, oignons et éponges [23,137–140] et dans les suspensions denses de colloïdes [141].



FIGURE 5.5 – Réponses en contrainte pour différents cisaillements de CTAT (2%)/NaCl (10 mM) à 26,5°C. (a) $0,05 \text{ s}^{-1}$, (b) $0,75 \text{ s}^{-1}$, (c) 2 s^{-1} , (d) 5 s^{-1} , (e) 10 s⁻¹ périodique, (f) 15 s⁻¹ quasi-périodique, (g) 17 s⁻¹ quasipériodique, (h) 19 s⁻¹ intermittent, (i) 21 s⁻¹ chaotique. Issue de la référence [134].

5.2 Le cas de CPCl/NaSal 6,3%

Rappelons que ce système présente un plateau s'étendant de $\dot{\gamma}_1=2,3 \text{ s}^{-1}$ à $\dot{\gamma}_2=21,4 \text{ s}^{-1}$ sur lequel deux bandes de cisaillement sont séparées par une interface ondulée de faible amplitude. Nous allons étudier les réponses en contrainte sur le plateau et au début de la seconde branche.

5.2.1 Analyse du signal temporel

Ce système présente des réponses en contrainte très singulières. La figure 5.6 présente une série de réponses en contrainte en fin de plateau. Les signaux présentent tous la fréquence du rotor dans leur signal.

De $\dot{\gamma_1}$ à 15 s⁻¹, le signal présente de faibles fluctuations de l'ordre de 0,1% de leur valeur moyenne. Quel que soit le cisaillement, la réponse en contrainte présente toujours la fréquence du rotor. Le signal à 12 s⁻¹ présente uniquement la fréquence du rotor (figure 5.6 (a)). À 15 s⁻¹ (fig. 5.6 (c)), le signal présente deux fréquences en plus de celle du rotor ($f_0 = 0,1939$ Hz). On peut voir le spectre de puissance de la réponse à 15 s⁻¹ sur la figure 5.7. Ces fréquences sont $f_1 = 0,1689$ Hz et $f_2 = 0,0417$ Hz. Le changement de période visible dans le signal à t = 1100 s correspond à l'apparition de f_2 (figure 5.6 (b)). Les autres pics dans le spectre en puissance correspondent à des combinaisons linéaires de la fréquence du rotor f_0 , ainsi que des fréquences propres f_1 et f_2 du système. Le signal présente deux fréquences intrinsèques, f_1 et f_2 , et est donc pseudo-périodique. Le couplage de la fréquence du rotor avec des non-linéarités du système pourrait être à l'origine de l'apparition d'autres modes et ainsi rendre la dynamique plus complexe.



FIGURE 5.6 – Ce graphique présente la route vers le chaos. Les réponses en contrainte de CPCl/NaSal 6,3% sont : (a) à 12 s⁻¹ périodique, (b) à 15 s⁻¹ pseudo-périodique, (c) à 20 s⁻¹ intermittente et à (d) 22 s⁻¹, (e) 25 s⁻¹ chaotique.

FIGURE 5.7 – Spectre de puissance par transformée de Fourier de la contrainte à 15 s⁻¹. Trois fréquences sont présentes dans le signal $f_0 = 0,1939$ Hz, $f_1 = 0,1689$ Hz et $f_2 = 0,0417$ Hz, ainsi que des combinaisons linéaires de celles-ci. f_0 correspond à la fréquence du rotor. Les fréquences de f_1 et f_2 sont intrinsèques au fluide et représentent la pseudo-périodicité du signal.



FIGURE 5.8 – Réponses en contrainte de CPCl/NaSal 6,3% à un cisaillement de 20 s⁻¹ en fin de plateau. Sur la figure de gauche, nous avons représenté trois expériences sur 30 minutes. On distingue clairement les phases laminaires des bouffées chaotiques.

Les mesures sont limitées à une durée de 1800 s, en raison de la limitation de l'acquisition à 30 000 points de mesure, due au logiciel du rhéomètre. Pour augmenter la durée de l'expérience, il faudrait limiter l'échantillonnage du signal en prenant un intervalle de temps plus grand entre les points (ici de 0,06 s d'intervalle entre deux points de mesure). Néanmoins, ceci limiterait l'analyse du signal.

La réponse en contrainte à 20 s^{-1} est très caractéristique de l'intermittence. En effet, sur la figure 5.8 de gauche, nous avons surperposé trois expériences à 20 s^{-1} pour lesquelles les réponses en contrainte présentent des phases laminaires et chaotiques d'une durée très variable. La figure 5.8 de droite montre un agrandissement d'un passage d'une bouffée chaotique à une phase laminaire.

La phase laminaire est caractérisée par un bruit très faible, sa période d'oscillation correspond à la période de rotation du cylindre intérieur, tandis que la bouffée chaotique est caractérisée par une augmentation de la valeur moyenne de la contrainte et de fortes fluctuations de celle-ci (~6%) comparées au bruit aux cisaillements inférieurs (~0,1%, estimé sur le signal à 12 s⁻¹). Ces bouffées chaotiques apparaissent et disparaissent de manière apparemment aléatoire (exemple pour trois expériences identiques sur la figure 5.8). L'intermittence est une des caractéristiques de la transition vers le chaos [142].

Sur ce signal, les bouffées oscillent autour d'une valeur moyenne de la contrainte supérieure à celle observée lors des phases laminaires (figure 5.8). Nous pouvons donc exclure l'intermittence de type I pour les signaux de la figure 5.8. Les types II et III diffèrent du précédent par la persistance du point fixe directement reliée à la durée des phases laminaires.

Bien que notre signal à 15 s^{-1} , précédant l'intermittence, soit pseudo-périodique, il ne nous a pas été possible de déterminer si nous étions en présence d'une intermittence de type II. En effet, notre statistique sur la durée des phases laminaires n'est pas suffisante pour étudier leur distribution.

À 22 (fig. 5.6 (d)) et 25 s⁻¹ (fig. 5.6 (e)), les réponses en contrainte présentent des fluctuations de l'ordre de 10% de leur valeur moyenne. Nous sommes au tout début de la seconde branche et les observations optiques de l'entrefer, figure 5.9, montrent un écoulement apparemment aléatoire, non-uniforme (voir chapitre 3). La figure 5.10 montre qu'à 25 s⁻¹ la dynamique est caractérisée par une exponentielle décroissante dans le spectre en puissance spécifique au chaos [143]. La

dynamique à 25 $\rm s^{-1}$ présente une des caractéristiques d'une dynamique chaotique.



FIGURE 5.9 – Observation optique de l'entrefer à 25 s⁻¹. L'écoulement paraît totalement désordonné.



FIGURE 5.10 – Spectre de puissance par transformée de Fourier de la contrainte à 25 s^{-1} . La ligne rouge représente l'ajustement avec une exponentielle décroissante. Le caractère exponentiel décroissant et irrégulier du continuum est significatif du chaos.

5.2.2 Attracteur et exposant de Lyapunov

Le système possède un grand nombre de degrés de liberté en raison de la grande variété de tailles de micelles dont il est composé. Son attracteur est donc complexe et ne peut être représenté simplement. On peut néanmoins en regarder des portions en utilisant la représentation par la méthode des retards. Nous avons choisi de tracer des sections de l'attracteur de notre système par cette méthode sur le signal intermittent à 20 s^{-1} afin de comparer une phase laminaire à une zone de chaos (bouffées). En effet, cette représentation graphique permet de visualiser l'autocorrélation du signal et ainsi de mettre en évidence ces phénomènes. En variant le retard, on peut mettre en évidence une décorrélation ou une corrélation d'un signal en fonction d'un intervalle de temps donné. Notre signal est riche de 30 000 points avec 0,06 s d'intervalle entre chaque point, ce qui représente une bonne statistique en comparaison avec celle de l'étude [24] qui était de 1500 points. La figure 5.11 présente trois sections de l'attracteur obtenues sur le signal intermittent à 20 s^{-1} . Elles représentent la contrainte au pas N en fonction de la contrainte au pas, respectivement de gauche à droite, N-1, N-25 et N-50, correspondant à des écarts de 0,06 s, 1,5 s et 3 s. Ces différents écarts permettent de visualiser le signal périodique laminaire, ainsi que les bouffées chaotiques qui se distinguent très nettement à partir d'un délai N-25.

Pour le diagramme de retard d'un signal non-chaotique, on s'attend à ce que les valeurs du paramètre observé soient fortement corrélées, c'est-à-dire qu'elles soient proches quel que soit le pas entre les valeurs comparées. À l'inverse, les phases chaotiques seront décorrélées et les valeurs du paramètre seront très dispersées, étalant la distribution.





FIGURE 5.11 – Diagrammes par la méthode des retards sur le signal intermittent à 20 s⁻¹. La contrainte au pas N est tracée en fonction de la contrainte au pas N-1, N-25 et N-50. La forte densité correspond au signal périodique de la phase laminaire, tandis que le nuage correspond aux bouffées chaotiques.



FIGURE 5.12 – Diagrammes par la méthode des retards sur le signal chaotique à 25 s⁻¹. La contrainte au pas N est tracée en fonction de la contrainte au pas N-1 (à gauche) et N-28.

Le diagramme de gauche de la figure 5.11 montre la contrainte au pas N en fonction du pas N-1. Le signal est concentré sur une ligne droite de pente 1 impliquant que les valeurs de la contrainte séparées par 0,06 s sont très proches. Le signal est donc fortement corrélé. On peut distinguer deux zones : une de forte densité et l'autre de densité moindre. Pour N-25, le système explore deux zones de l'espace des phases très nettes. La zone marquée par un grand nombre de valeurs de la contrainte correspond aux phases laminaires du signal intermittent. Durant ces phases, le signal est périodique de même période que la rotation imposée. Ces oscillations se produisent autour d'une valeur en contrainte stationnaire. Le signal étant périodique, la contrainte prend un grand nombre de fois les mêmes valeurs augmentant ainsi le nombre d'événements dans la représentation par la méthode des retards. Le « cercle » de la figure 5.11 de droite est caractéristique d'un signal périodique. Tandis que le nuage moins dense, aux contraintes élevées et dispersées donc non-corrélées correspond aux bouffées chaotiques. Ce nuage est situé dans une région différente de l'espace des phases, caractérisant les bouffées chaotiques.

La figure 5.12 représente les diagrammes par la méthode des retards du signal à 25 s^{-1} en contrainte au pas N en fonction des pas N-1 et N-28. Le signal reste corrélé pour un intervalle de temps de 0,06 s. Pour la représentation de la contrainte au pas N en fonction du pas N-28 (fig. 5.12 droite), la décorrélation est plus évidente. L'intervalle de temps est suffisamment grand pour que l'on observe la décorrélation.

Une phase chaotique se caractérise par la séparation exponentielle de trajectoires dans l'espace des phases partant de conditions initiales très proches. Cette divergence se mesure par l'exposant de Lyapunov qui est le taux d'accroissement de la « distance » entre deux points initialement proches. Un système dissipatif périodique aura un écart fini entre deux trajectoires. Le plus grand exposant de Lyapunov non nul est négatif. Un système chaotique présentera une divergence entre deux trajectoires initialement proches dans l'espace, ce qui se traduira par un exposant de Lyapunov positif [131, 144].

Pour déterminer si une dynamique est chaotique, on mesure l'évolution dans le temps de la distance entre deux points de l'espace des phases initialement proches. À partir d'une série temporelle σ , on construit un vecteur de dimension m, $\vec{X_i} = (\sigma_i, \sigma_{i+L}, ..., \sigma_{i+(m-1)L})$, où m est appelé la dimension de plongement et L le délai temporel. Le théorème de Takens [145] assure que l'on peut « reconstruire » un portrait de phase d'un système dynamique à partir de $\vec{X_i}$. Pour tout couple de points dans l'espace des phases, on peut définir la norme Euclidienne entre deux vecteurs comme $d_{ij}(k) = ||\vec{X}_{i+k} - \vec{X}_{j+k}||$. On pose $d_{ij} \approx d_0 e^{\lambda k}$, avec λ l'exposant maximal de Lyapunov. Si $\lambda > 0$, alors la dynamique est chaotique. En traçant la fonction $S = ln \left[\frac{d_{ij}(k)}{d_{ij}(0)}\right]$ en fonction de k, nous pouvons donner une estimation de l'exposant maximal de Lyapunov (figure 5.13), à partir de la pente de la courbe S(k). À l'aide du logiciel TISEAN [146] d'analyse de séries temporelles, nous avons estimé sur le signal en contrainte à 25 s⁻¹ un exposant de Lyapunov maximum positif ($\lambda_{max} \sim 0,05$), ce qui souligne le caractère chaotique.



FIGURE 5.13 – $S = ln \left[\frac{d_{ij}(k)}{d_{ij}(0)}\right]$ en fonction de k, obtenue à l'aide de *TISEAN* [146]. La pente (en rouge) de S représente $\lambda_{max}.\Delta t$, avec Δt l'intervalle entre deux points de mesure (ici, $\Delta t = 0,06$ s). $m \in [6; 10]$ et L = 2. Un autre test permet de mettre en évidence une dynamique chaotique : la dimension de corrélation de l'attracteur (ν). L'intégrale de corrélation C(R) est définie dans un espace des

phases de dimension m, comme $C(R) = \lim_{N \to \infty} \frac{1}{N^2} \sum_{i,j=1}^{N} H(R - ||\vec{X}_i - \vec{X}_j||)$, avec N le nombre

total de points de la série temporelle, H la fonction de Heaviside et $||\vec{X}_i - \vec{X}_j||$ la distance entre deux points i et j. La somme dans C(R) donne le nombre de paires de points séparés par une distance inférieure à R. Aux petites valeurs de R, $C(R) \sim R^{\nu}$, où ν est la dimension de corrélation qui donne une information sur la nature de l'attracteur. $\nu = 1$ correspond à un signal périodique (cycle limite), $\nu = 2$ correspond à un signal bipériodique (tore) et $\nu > 2$ correspond à un attracteur étrange.

À l'aide du logiciel TISEAN [146], nous avons déterminé, dans le cas de la réponse en contrainte à 25 s⁻¹, que les trajectoires de C(R) convergent pour m = 7 et $\nu = 6, 6$ (figure 5.14). Notons que $\nu < m$ est une caractéristique d'un signal chaotique [147]. De plus, $\nu_{25} = 6, 6 > 2$ est une caractéristique d'un attracteur étrange d'un signal chaotique. Contrairement à un processus stochastique, dont les fluctuations sont caractérisées par une dimension de corrélation infinie, un système chaotique possède une dimension de corrélation finie pour laquelle le signal est corrélé. Ce résultat implique que le signal est dominé par une dynamique chaotique plutôt que par un bruit stochastique [147].



FIGURE 5.14 – Intégrale de corrélation obtenue à l'aide de *TISEAN* [146], avec $m \in [1; 10]$. Pour les petites valeurs de R, $C(R) \sim R^{\nu}$. Sur ce graphique, ln(C(R)) est tracé en fonction de ln(R). La pente ν de ln(C(R)) converge pour m = 7 à la valeur $\nu = 6, 6$. Cette valeur est une estimation de la dimension de corrélation.

5.3 Ouverture

Nous avons vu que CPCl/NaSal 6,3% à 22°C présente des relaxations en contrainte caractéristiques de la route vers le chaos. Les diagrammes par la méthode des retards du signal intermittent ont permis de constater que l'espace des phases exploré par le système est très différent lors des bouffées que lors des phases laminaires. L'existence d'un exposant maximal de Lyapunov positif, ainsi qu'une dimension de corrélation finie (ν =6,6) nous indiquent que la dynamique est chaotique au début de la seconde branche de la courbe d'écoulement. Ce changement de régime peut

5.3. Ouverture

être dû au passage à la turbulence élastique qui déstabilise l'écoulement et augmente la viscosité apparente.

Lorsqu'à partir d'un cisaillement seuil, toutes les micelles sont alignées suivant la direction de l'écoulement et que l'écoulement secondaire est pleinement développé, nous pouvons imaginer que le fluide ne parvient plus à dissiper l'énergie que lui communique la rotation par frottements et convection. La conséquence est que la microstruture se fragmente et se désaligne localement sous l'effet des contraintes normales, en perturbant fortement l'écoulement. L'observation de la transition vers le chaos à bas *Reynolds* souligne la déstructuration de la microstructure et de l'écoulement induite par l'élasticité.

Nous avons également observé sur le système CPCl/NaSal 10% à 22°C de l'intermittence spatiotemporelle (diagrammes 3.30 (d,e,f)). Sur ces diagrammes spatiotemporels, nous avons montré que l'augmentation du cisaillement engendre une augmentation de la fréquence des bouffées chaotiques (phases durant lesquelles l'écoulement semble désordonné). Cette intermittence spatiotemporelle rappelle la transition vers un écoulement turbulent, comme l'ont montré P. Bergé *et al.* sur l'instabilité de *Rayleigh-Bénard* [129].

La « route » vers le chaos passe par de l'intermittence probablement de type II, mais cela reste à confirmer. Pour poursuivre ce travail préliminaire, il serait intéressant d'obtenir une statistique suffisante sur la durée des phases laminaires sur le signal intermittent, afin de déterminer le type d'intermittence. Une intermittence de type II indiquerait une transition sous-critique caractéristique de la turbulence élastique [77,99]. De plus, une étude statistique des bouffées chaotiques pour un cisaillement de 21 s⁻¹ (juste à l'extrême fin du plateau) permetterait d'observer si la fréquence de celles-ci change avec l'augmentation du cisaillement. Une augmentation de la fréquence impliquerait que l'intensité du chaos augmente et que l'on s'approche de la transition. Il serait également intéressant d'observer l'intermittence dans les signaux des contraintes normales pour des cisaillements en fin de plateau. Notons qu'il est difficile d'obtenir des mesures longues (de plusieurs heures) en géométrie cône-plan pour la mesure de la première différence des contraintes normales, ceci en raison de l'éjection rapide de l'échantillon en dehors de la géométrie à des cisaillements élevés en fin de plateau.

Chapitre 5. Chaos

Conclusion

Au cours de ce travail de thèse, nous avons étudié l'écoulement en bandes de cisaillement de différentes solutions semi-diluées de micelles géantes et nous nous sommes plus particulièrement focalisés sur la dynamique de l'interface entre les bandes. Nous avons dans un premier temps choisi un système d'étude bien connu dans la littérature (CTAB/NaNO₃) pour suivre un comportement *a priori* standard [8] : lorsqu'elle est soumise à des sollicitations de petite amplitude (régime linéaire), la solution se comporte comme un fluide Maxwellien dont la dynamique est gouvernée par un temps de relaxation unique τ_R tandis que sous écoulement, l'évolution de la contrainte de cisaillement σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ est caractérisée par l'existence d'un plateau associé à l'organisation de l'écoulement en bandes de cisaillement. De plus, la réponse transitoire à l'application d'un taux de cisaillement constant correspondant à la région plateau, présente les caractéristiques typiques de l'écoulement d'un système de micelles géantes évoluant vers un état en bandes [8,87] (overshoot aux temps courts, suivi par une relaxation sigmoïdale et des oscillations amorties aux temps plus longs). Le choix de ce système particulier a également été motivé par des résultats récents mettant en évidence une ondulation de l'interface entre les bandes [4].

Nous avons suivi, en géométrie d'écoulement de Taylor-Couette, la formation et la dynamique de l'interface entre les bandes à l'aide de mesures rhéologiques pures combinées, de manière simultanée, à des visualisations directes de l'échantillon dans les plans (gradient de vitesse-vorticité) et (vitesse-vorticité) au moyen d'une nappe laser ou d'un éclairement en lumière blanche.

De manière générale, nous avons observé que l'établissement de la structure de bandes pour un échantillon initialement au repos, puis cisaillé à $\dot{\gamma}$ fixé dans la région plateau, est le suivant : aux temps courts ($\tau \sim \tau_R$) la solution devient totalement turbide. Ce comportement est associé à l'overshoot dans la réponse en contrainte. La relaxation de l'overshoot correspond à la formation et à la migration vers le cylindre intérieur d'une interface diffuse entre une région turbide et une région transparente. La turbidité intrinsèque de la phase induite est une propriété clé qui génère le contraste de diffusion entre les deux bandes, permettant ainsi de suivre aisément le comportement de l'interface. Elle signifie qu'il existe une taille caractéristique micronique dans la bande induite, probablement reliée à l'existence de fluctuations de concentration. L'étape suivante est plus lente : l'interface s'affine et continue à migrer en direction du cylindre intérieur jusqu'à une position d'équilibre qui dépend du cisaillement appliqué $\dot{\gamma}$. Durant cette étape, la contrainte de cisaillement croît lentement, de manière linéaire avec le temps. Enfin, au-delà d'un temps qui augmente avec $\dot{\gamma}$, l'évolution temporelle de la contrainte de cisaillement change : $\sigma(t)$ croît de façon monoexponentielle jusqu'à un état stationnaire et nous avons observé que ce changement de variation est associé à la déstabilisation de l'interface qui adopte alors un profil ondulé de vecteur d'onde dirigé suivant la vorticité.

L'étude du comportement spatiotemporel de l'interface nous a permis d'identifier trois dynamiques distinctes le long du plateau de contrainte. Aux petits cisaillements, le profil de l'interface oscille vers le haut et le bas de la cellule et nous avons parfois observé des ondes se propageant verticalement. Aux cisaillements intermédiaires, le profil de l'interface est stable spatialement, la position des minimas oscillant dans le temps à une fréquence fixée, indépendante de $\dot{\gamma}$. Nous n'avons pas d'interprétation simple de ce comportement particulier mais, selon une prédiction théorique récente [107], il est possible que l'interface soit également instable dans la direction de la vitesse, générant la modulation temporelle. Enfin, aux cisaillements les plus élevés, la dynamique apparaît plus complexe : des évènements de fusion de minima successifs du profil interfacial et de nucléation de nouveaux minima se produisent continuellement, avec des durées de vie de l'ordre de la minute.

À partir du comportement aux temps longs nous avons extrait la longueur d'onde et l'amplitude du profil de l'interface. Le long du plateau, la longueur d'onde croît jusqu'à atteindre quelques tailles d'entrefer tandis que l'amplitude évolue de façon non monotone et présente un maximum lorsque que les proportions relatives de chacune des bandes sont très voisines.

Nous avons montré que la dynamique aux temps longs ne dépend pas de la nature du paramètre de contrôle (σ ou $\dot{\gamma}$ imposés). Par contre les transitoires sont différents, puisqu'à contrainte imposée la migration de l'interface est dirigée vers le cylindre extérieur, la déstabilisation de l'interface se produisant durant cette étape de migration.

Nous avons également étudié l'influence de certains paramètres géométriques sur la dynamique de l'interface. La diminution de la hauteur de la cellule a permis de mettre en évidence les effets de bords. En effet, aux bords supérieur et inférieur de la cellule, l'interface est déformée et l'écoulement perturbé. Les longueurs d'onde du profil de l'interface accessibles se trouvent limitées avec la géométrie de 1 cm de hauteur. La diminution du rayon intérieur a mis en évidence l'importance de l'effet Weissenberg aux petits rayons. De plus, les longueurs d'onde du profil de l'interface accessibles sont bien plus importantes. Cependant, il ne nous a pas été possible de conclure si la taille de l'entrefer ou la taille du rayon intérieur sont responsables de l'augmentation de la longueur d'onde. La géométrie a également une influence sur la dynamique temporelle de l'interface. En effet, nous avons observé que la fréquence d'oscillation des minima de l'interface est sensible au rayon intérieur. Lorsque celui-ci diminue, nous avons enregistré une augmentation de cette fréquence. Par contre, la signature mécanique de l'instabilité est toujours présente et indépendante des dimensions de la géométrie.

En utilisant deux modes différents de visualisations en lumière blanche, nous avons montré que l'instabilité d'interface est associée à la formation de structures cellulaires, indiquant clairement que l'écoulement en bandes de cisaillement est tri-dimensionnel. D'une part, les visualisations de l'écoulement à l'aide de particules anisotropes réfléchissantes (Kalliroscope) dans le plan (vitessevorticité) ont révélé la formation de bandes alternativement brillantes et sombres empilées suivant l'axe de rotation du cylindre. Ce motif axisymétrique de bandes empilées suivant la vorticité est analogue aux observations faites sur les rouleaux de Taylor dans l'instabilité de Taylor-Couette [66]. D'autre part, nous avons pu observer directement la structure de l'écoulement en éclairant le plan (gradient de vitesse-vorticité) en lumière blanche. Nous avons encore une fois tiré profit des propriétés de diffusion de la phase induite en visualisant les variations d'indice générées par l'écoulement. Nous avons ainsi montré que des structures cellulaires empilées suivant la direction des cylindres se forment principalement dans la bande induite, apportant ainsi la première preuve directe d'un écoulement en bandes 3D. Ces observations remettent en cause l'hypothèse d'un écoulement unidirectionnel admise jusqu'alors. Ce mode de visualisation ouvre également une autre piste pour interpréter la dynamique oscillatoire des minima de l'interface : ce phénomène semble en effet associé à la destruction et à la reconstruction périodiques de l'interface entre les bandes de cisaillement au niveau de l'écoulement radial dirigé vers le cylindre intérieur. L'utilisation des paillettes de Kalliroscope a également permis de montrer que la dynamique de l'écoulement est parfaitement corrélée à celle de l'interface. Ainsi, le motif complexe observé aux hauts taux de cisaillement est relié à la nucléation et à l'annihilation continues de paires de rouleaux.

Nous avons étendu cette étude à d'autres systèmes de micelles géantes et montré que les comportements que nous avons observés ne sont pas spécifiques au système CTAB/NaNO₃. Nous avons testé une solution de CTAB/KBr et étudié plus particulièrement le système CPCl/NaSal à différentes concentrations en tensioactif et co-tensioactif. Ce système de micelles géantes est probablement celui qui a été le plus étudié ces 20 dernières années dans la littérature. Nous avons montré, dans la gamme de concentration choisie (6-14%) que l'écoulement en bandes de cisaillement des solutions de CPCI/NaSal suivait globalement le même comportement que celui observé sur le système CTAB/NaNO₃. L'interface est instable et ondule suivant l'axe des cylindres et des rouleaux se développent dans la phase induite. En normalisant le cisaillement par la largeur du plateau pour différents systèmes, nous avons constaté que les amplitudes et longueurs d'onde suivent une évolution très voisine. De plus, l'évolution temporelle de la contrainte est similaire avec un petit *undershoot* et une croissance lente vers l'état stationnaire associée au développement de l'instabilité d'interface. La robustesse des phénomènes observés sur ces différents systèmes montre que ce comportement mécanique particulier est la signature mécanique de l'instabilité de l'écoulement en bandes de cisaillement. Notons que cette signature a été récemment reproduite qualitativement par des simulations numériques basées sur le modèle diffusif de Johnson-Segalman (dJS) [43, 107,109]. Par ailleurs, la réponse transitoire de la plupart de ces systèmes a été étudiée dans la littérature à l'aide d'une géométrie cône-plan [90, 95, 148]. Dans chaque cas, il est possible d'observer le petit *undershoot* en contrainte avant l'établissement de l'état stationnaire, suggérant que l'instabilité que nous avons observée en géométrie de Taylor-Couette se développe également en cône-plan. Enfin, cette signature mécanique a également été observée dans des systèmes de polymères téléchéliques présentant des bandes de cisaillement, dans un domaine de concentration où les polymères forment un réseau enchevêtré d'agrégats sphériques [13], ce qui pose la question de l'existence de l'instabilité dans d'autres systèmes de morphologie différente.

Nous avons proposé deux pistes pour interpréter l'écoulement en bandes 3D. La première est basée sur une analyse de stabilité linéraire récente de l'écoulement en bandes de cisaillement dans le cadre du modèle dJS en géométrie plane [109]. Le calcul de l'écoulement de base prévoit que la première et la seconde différence des contraintes normales (respectivement N_1 et N_2) sont différentes dans chacune des bandes. S. Fielding a montré que les sauts de N_1 et N_2 à l'interface amplifient toute perturbation linéaire de cette dernière dans les directions respectivement de la vitesse et de la vorticité. Par conservation de la masse, ce mécanisme purement interfacial génère un écoulement 3D.

La deuxième interprétation possible repose sur un mécanisme en volume dû à l'existence d'une instabilité élastique de la phase induite. Nous avons montré que la première différence des contraintes normales dans la bande induite est suffisamment importante pour que le seuil de l'instabilité élastique linéaire en géométrie courbée établi par Larson [78] puis Pakdel et al [79] soit atteint, indiquant que la bande induite est susceptible de se déstabiliser sous l'effet de l'anisotropie des contraintes normales.

Expérimentalement, nous n'avons pas tranché entre ces deux mécanismes. Néanmoins, nous avons mis en évidence certaines propriétés qui penchent en faveur du mécanisme en volume. D'une part, la seconde branche de la courbe d'écoulement présente un rhéoépaississement apparent associé à une désorganisation de l'écoulement caractéristique du développement de la turbulence élastique [149]. D'autre part, sur un système particulier (CPCl/NaSal 6,3%) nous avons mis en évidence une dynamique chaotique, en observant que ce système transite vers le chaos via l'intermittence. En effet, les signaux en contrainte en fin de plateau présentent de l'intermittence temporelle. La

caractère chaotique de la dynamique au début de la seconde branche est confirmé par l'analyse du signal en contrainte. Deux éléments caractéristiques d'une dynamique chaotique ont été mis en évidence : un exposant de Lyapunov maximal positif est trouvé, ainsi qu'une dimension de corrélation finie. Ces différentes observations suggèrent que l'instabilité élastique se développe sur le plateau avant le passage à la turbulence sur la seconde branche. De plus, une récente publication de Fielding [149] a montré par des simulations numériques du modèle dJS que l'instabilité interfaciale est éliminée par la courbure. Ces derniers résultats pointent clairement vers l'instabilité élastique en volume de la phase induite comme mécanisme responsable de l'écoulement en bandes de cisaillement 3D.

Au cours de ce travail, nous nous sommes également focalisés sur la formation de l'interface entre les bandes. La motivation principale était de revisiter l'étude de Radulescu et al [93] dont le but était de tester les prédictions du modèle dJS. Rappelons que ce modèle tensoriel inclut un terme non-local de diffusion de la contrainte viscoélastique permettant de sélectionner la valeur de la contrainte plateau et de tenir compte de l'épaisseur finie de l'interface entre les bandes. Pour un système préparé dans un état en bandes puis soumis à un saut de taux de cisaillement, le modèle prévoit que l'évolution temporelle de la contrainte est gouvernée par trois temps caractéristiques correspondant respectivement à la destruction, la reconstruction puis la migration de l'interface vers sa position stationnaire. Cette dernière étape est supposée être la plus lente et la mesure de son temps caractéristique permet d'accéder au coefficient de diffusion \mathscr{D} de la contrainte. Or nous avons vu sur les différents systèmes de micelles géantes étudiés que l'existence de l'instabilité d'interface se traduisait par une croissance lente de la contrainte de cisaillement au cours du temps vers l'état stationnaire, rajoutant ainsi une étape lente dont le modèle ne tient pas compte. En reproduisant à la fois le protocole expérimental de l'étude de Radulescu basé sur des sauts de taux de cisaillement et un protocole plus simple basé sur des sauts depuis l'état de repos, nous avons montré que l'échelle de temps de l'étape de migration de l'interface vers sa position d'équilibre n'est pas la plus longue. La visualisation directe de l'interface dans le plan gradient de vitesse-vorticité nous a permis d'identifier cette étape de migration de l'interface plane et de la relier à une croissance linéaire de la contrainte au cours du temps. Nous avons mesuré la position de l'interface et montré qu'elle suivait une variation exponentielle au cours du temps, en accord avec les prédictions du modèle. Du temps caractéristique de cette étape nous avons déduit un coefficient de diffusion de la contrainte de l'ordre de 10^{-10} à 10^{-11} m².s⁻¹ pour tous les systèmes étudiés. Nous avons testé différentes amplitudes de saut de taux de cisaillement depuis le repos. Pour le système CTAB/NaNO₃, la valeur du coefficient de diffusion est indépendante du cisaillement appliqué alors qu'elle croît légèrement avec le cisaillement pour les solutions de CPCl/NaSal et CTAB/KBr. Les valeurs obtenues sont deux à trois ordres de grandeurs plus élevées que celles obtenues dans l'étude initiale de Radulescu et al. Par contre, elles sont en accord raisonnable avec deux études récentes menées à l'aide de techniques expérimentales différentes par le groupe de Bordeaux [119, 120]. A partir du temps de migration et du coefficient de diffusion, nous avons calculé la longueur de corrélation de la contrainte correspondante. Nous avons obtenu des valeurs comprises entre 5 et $20 \ \mu m$, valeurs qui peuvent difficilement être comparées aux tailles caractéristiques des micelles géantes, la taille typique de la maille du réseau micellaire et la longueur de persistance étant de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. Par contre, l'ordre de grandeur micronique des valeurs que nous avons obtenu suggère que la longueur de corrélation de la contrainte pourrait être reliée aux objets ou aux fluctuations de concentration responsables de la turbidité de la phase induite. Par ailleurs, de telles valeurs de la longueur de corrélation mettent également en question le mécanisme interfacial proposé par S. Fielding pour expliquer l'écoulement en bandes 3D. En effet, pour de telles valeurs, la relation de dispersion est toujours négative, indiquant que l'écoulement est toujours stable dans ces conditions [107, 109].

Les résultats présentés dans cette thèse montrent la complexité de l'écoulement en bandes de cisaillement dans les systèmes de micelles géantes. S'ils permettent probablement d'expliquer un grand nombre de comportements fluctuants observés récemment dans la littérature, ils posent aussi un certain nombre de questions et ouvrent quelques perspectives pour poursuivre ce travail. La mise en évidence claire d'un écoulement 3D n'est pas suffisante à elle seule. Il apparaît dorénavant nécessaire de quantifier l'écoulement secondaire en utilisant des techniques adaptées. La technique de vélocimétrie ultra-sonore [22], évoquée au chapitre 1, devrait permettre d'obtenir les trois composantes de la vitesse à l'aide de trois capteurs. Elle pourrait également être mise à profit pour mettre clairement en évidence le caractère instable et tri-dimensionnel de l'écoulement sur la seconde branche de la courbe d'écoulement. Nous n'avons pas abordé les problèmes de conditions aux bords et de glissement. L'idéal serait de réaliser simultanément des observations de l'échantillon et de mesurer les composantes du champ de vitesse pour établir une corrélation propre entre nos observations et la dynamique de l'écoulement et quantifier les effets de glissement. La mise au point d'une technique de PIV serait sans doute appropriée.

Par ailleurs notre étude a été réalisée uniquement en géométrie de Taylor-Couette. L'observation de la signature mécanique de l'instabilité dans les données de la littérature obtenues en géométrie cône plan suggère qu'un écoulement en bandes 3D peut se développer dans ce type de géométrie ou la contrainte est quasi-constante. Reste que dans ce cas également, un effort expérimental important doit être fait pour accéder à des grandeurs locales. Il faudrait par exemple observer l'échantillon dans cette géométrie à l'aide d'une illumination laser et faire de la détection du mouvement de particules ensemençant la solution, comme l'ont proposé Tapadia et al [151].

Concernant le mécanisme de l'instabilité en géométrie Couette, plusieurs tests expérimentaux sont envisageables pour trancher définitivement entre le mécanisme interfacial proposé par Fielding et l'instabilité élastique. En variant la courbure à entrefer constant, avec une cellule de Couette de grand rayon, nous pourrions par exemple tester ces deux mécanismes. Suivre le comportement de l'interface dans le plan vitesse-gradient de vitesse pour déterminer si l'interface est stable selon la direction de la vitesse est aussi un enjeu important.

L'étude préliminaire menée sur la dynamique chaotique du système CPCl/NaSal 6,3% mérite d'être poursuivie. Travailler à partir d'une meilleure statistique sur la durée des phases laminaires permettrait de déterminer s'il s'agit, comme nous le pensons, d'intermittence de type II. De plus, il serait intéressant d'étudier l'intermittence spatiotemporelle observée sur le CPCl/NaSal 10%. Ces comportements observés en fin de plateau pourraient signer le passage vers la turbulence élastique via le chaos temporel et spatiotemporel. La mise en évidence d'intermittence spatiotemporelle pourrait révéler une transition vers la turbulence similaire à celle observée dans le cas de l'instabilité de Taylor-Couette par Andereck et al. [66].

Enfin, un point crucial qui permettrait de réellement progresser dans la compréhension de l'écoulement en bandes de cisaillement dans les sytèmes de micelles géantes concerne la détermination de la structure de la phase induite. L'observation de la microstructure et la caractérisation des objets formés sous cisaillement constituent un défi expérimental à relever pour élucider l'origine des fluctuations d'indice optique, ainsi que la présence d'une longueur de corrélation micronique. Une des perspectives est d'utiliser la technique de cryofracture pour figer un échantillon afin d'observer sa structure au microscope électronique. On pourrait par exemple tenter de figer une faible portion d'échantillon juste après l'avoir cisaillé (le temps de relaxation des fluctuations étant de l'ordre de la minute) afin d'observer les structures induites et peut-être ainsi élucider l'origine de la longueur micronique responsable de la turbidité de la phase induite.

Conclusion

Bibliographie

- J.-F. Berret, D. C. Roux, and G. Porte. Isotropic-to-nematic transition in wormlike micelles under shear. J. Phys. II (France), 4(8) :1261–1279, 1994.
- [2] J.-F. Berret, D. C. Roux, G. Porte, and P. Lindner. Shear-induced isotropic-to-nematic phase-transition in equilibrium polymers. *Eur. Phys. Lett.*, 25(7):521–526, 1994.
- [3] M. M. Britton and P. T. Callaghan. Shear banding instability in wormlike micellar solutions. Eur. Phys. J. B, 7(2) :237–249, 1999.
- [4] S. Lerouge, M. Argentina, and J. P. Decruppe. Interface instability in shear-banding flow. *Phys. Rev. Lett.*, 96(8) :088301, 2006.
- [5] H. Rehage and H. Hoffmann. Viscoelastic surfactant solutions model systems for rheological research. Mol. Phys., 74(5) :933–973, 1991.
- [6] J. B. Salmon, S. Manneville, and A. Colin. Shear banding in a lyotropic lamellar phase. I. time-averaged velocity profiles. *Phys. Rev. E*, 68(5):051503, 2003.
- [7] J. B. Salmon, S. Manneville, and A. Colin. Shear banding in a lyotropic lamellar phase. II. temporal fluctuations. *Phys. Rev. E*, 68(5):051504, 2003.
- [8] J.F. Berret. *Molecular gels*, chapter Rheology of wormlike micelles : equilibrium properties and shear-banding transition. Elsevier, 2005.
- [9] L. B. Chen, M. K. Chow, B. J. Ackerson, and C. F. Zukoski. Rheological and microstructural transitions in colloidal crystals. *Langmuir*, 10(8) :2817–2829, 1994.
- [10] J.-F. Berret and Y. Serero. Evidence of shear-induced fluid fracture in telechelic polymer networks. *Phys. Rev. Lett.*, 87(4) :048303, 2001.
- [11] Waton G., Michels B., Steyer A., and Schosseler F. Shear-induced demixing and shearbanding instabilities in dilute triblock copolymer solutions. *Macromolecules*, 37(6):2313– 2321, 2004.
- [12] S. Manneville, A. Colin, G. Waton, and F. Schosseler. Wall slip, shear banding, and instability in the flow of a triblock copolymer micellar solution. *Phys. Rev. E*, 75(6):061502, 2007.
- [13] J. Sprakel, E. Bartscherer, G. Hoffmann, M. A. Cohen Stuart, and J. van der Gucht. Dynamics of polymer bridge formation and disruption. *Physical Review E*, 78(4):040802, 2008.
- [14] W. Losert, L. Bocquet, T. C. Lubensky, and J. P. Gollub. Particle dynamics in sheared granular matter. *Phys. Rev. Lett.*, 85(7) :1428–1431, 2000.
- [15] D. M. Mueth, G. F. Debregeas, G. S. Karczmar, P. J. Eng, S. R. Nagel, and H. M. Jaeger. Signatures of granular microstructure in dense shear flows. *Nature*, 406(6794) :385–389, 2000.

- [16] P. Coussot, J. S. Raynaud, F. Bertrand, P. Moucheront, J. P. Guilbaud, H. T. Huynh, S. Jarny, and D. Lesueur. Coexistence of liquid and solid phases in flowing soft-glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 88(21) :218301, 2002.
- [17] K. Krishan and M. Dennin. Viscous shear banding in foam. Physical Review E, 78(5):051504, 2008.
- [18] R. Makhloufi, J. P. Decruppe, A. Aït-Ali, and R. Cressely. Rheooptical study of worm-like micelles undergoing a shear banding flow. *Eur. Phys. Lett.*, 32(3) :253–258, 1995.
- [19] J. P. Decruppe, R. Cressely, R. Makhloufi, and E. Cappelaere. Flow birefringence experiments showing a shear-banding structure in a CTAB solution. *Coll. and Polym. Sci.*, 273(4):346–351, 1995.
- [20] P. T. Callaghan, M. E. Cates, C. J. Rofe, and J.B.A.F. Smeulders. A study of the "spurt effect" in wormlike micelles using nuclear magnetic resonance microscopy. J. Phys. II, 6(3) :375–393, 1996.
- [21] M. Fink L. Sandrin, S. Manneville. Ultrafast two-dimensional ultrasonic speckle velocimetry : A tool in flow imaging. Appl. Phys. Lett., 78 :1155–1157, 2001.
- [22] S. Manneville, L. Bécu, and A. Colin. High-frequency ultrasonic speckle velocimetry in sheared complex fluids. *Eur. Phys. J.-Appl. Phys.*, 28(3):361–373, 2004.
- [23] J. B. Salmon, A. Colin, S. Manneville, and F. Molino. Velocity profiles in shear-banding wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, 90(22) :228303, 2003.
- [24] R. Bandyopadhyay, G. Basappa, and A. K. Sood. Observation of chaotic dynamics in dilute sheared aqueous solutions of ctat. *Phys. Rev. Lett.*, 84(9) :2022–2025, 2000.
- [25] R. Ganapathy and A. K. Sood. Intermittency route to rheochaos in wormlike micelles with flow-concentration coupling. *Phys. Rev. Lett.*, 96(10) :108301, 2006.
- [26] L. Bécu, D. Anache, S. Manneville, and A. Colin. Evidence for three-dimensional unstable flows in shear-banding wormlike micelles. *Phys. Rev E*, 76(1) :011503, 2007.
- [27] W. M. Holmes, M. R. Lopez-Gonzalez, and P. T. Callaghan. Shear-induced constraint to amphiphile chain dynamics in wormlike micelles. *Eur. Phys. Lett.*, 66(1) :132–138, 2004.
- [28] L. Bécu, S. Manneville, and A. Colin. Spatiotemporal dynamics of wormlike micelles under shear. *Phys. Rev. Lett.*, 93(1) :018301, 2004.
- [29] N. A. Spenley, X. F. Yuan, and M. E. Cates. Nonmonotonic constitutive laws and the formation of shear-banded flows. J. Phys. II, 6(4):551–571, 1996.
- [30] J. K. G. Dhont. A constitutive relation describing the shear-banding transition. Phys. Rev. E, 60(4) :4534-4544, 1999.
- [31] O. Radulescu, P. D. Olmsted, and C. Y. D. Lu. Shear banding in reaction-diffusion models. *Rheol. Acta*, 38(6) :606–613, 1999.
- [32] C. Masselon. Effets non locaux dans un écoulement microfluidique de micelles géantes. thèse de l'université de Bordeaux non-publiée, 2008.
- [33] P. Oswald. *Rhéophysique*. Collection Echelle, Belin, 2005.
- [34] M. Lenoble, P. Snabre, and B. Pouligny. The flow of a very concentrated slurry in a parallel-plate device : Influence of gravity. *Physics of Fluids*, 17(7) :073303, 2005.
- [35] T. Pope P. Sullivan E. Nelson A. Hernandez T. Olsen M. Parlar B. Powers A. Roy A. Wilson A. Twynam S. Kefi, J. Lee. Expanding applications for viscoelastic surfactants. *Oilfield Rev.*, pages 10 – 16, 2004.

- [36] C. Tanford. The hydrophobic effect : formation of micelles and biological membranes. Wiley and sons, 1973.
- [37] M. E. Cates. Dynamics of living polymers and flexible surfactant micelles scaling laws for dilution. J. Phys., 49(9) :1593–1600, 1988.
- [38] M. E. Cates and S. J. Candau. Statics and dynamics of worm-like surfactant micelles. J. Phys. Cond. Matt., 2(33) :6869–6892, 1990.
- [39] P.-G. de Gennes. Scaling concepts in polymer physics. Cornell university, Ithaca, 1979.
- [40] M. Doi and F. Edwards. The theory of polymer dynamics. oxford, 1986.
- [41] M. E. Cates. Nonlinear viscoelasticity of wormlike micelles (and other reversibly breakable polymers). J. Phys. Chem., 94(1):371–375, 1990.
- [42] M. Johnson and D. Segalman. A model for viscoelastic fluid behavior which allows nonaffine deformation. J. Non-Newtonian Fluid Mech., 2(9) :255–270, 1977.
- [43] S. M. Fielding. Complex dynamics of shear banded flows. Soft Matter, 3(1) :1262–1279, 2007.
- [44] O. Diat, D. Roux, and F. Nallet. Effect of shear on lyotropic lamellar phase. J. Phys. II, 3(1427), 1993.
- [45] L. Ramos, F. Molino, and G. Porte. Shear melting in lyotropic hexagonal phases. *Langmuir*, 16(5846), 2000.
- [46] E. K. Wheeler, P. Fischer, and G. G. Fuller. Time-periodic flow induced structures and instabilities in a viscoelastic surfactant solution. J. Non-Newt. Fluid Mech., 75(2-3) :193– 208, 1998.
- [47] Y. T. Hu and A. Lips. Kinetics and mechanism of shear banding in an entangled micellar solution. J. Rheol., 49(5) :1001–1027, 2005.
- [48] G. Debregeas, H. Tabuteau, and J. M. di Meglio. Deformation and flow of a two-dimensional foam under continuous shear. *Phys. Rev. Lett.*, 87(17) :178305, 2001.
- [49] J. Lauridsen, G. Chanan, and M. Dennin. Velocity profiles in slowly sheared bubble rafts. *Phys. Rev. Lett.*, 93(1) :018303, 2004.
- [50] C. Gilbreth, S. Sullivan, and M. Dennin. Flow transitions in two-dimensional foams. *Phys. Rev. E*, 74(5):051406, 2006.
- [51] Princen H. M. Rheology of foams and highly concentrated emulsions. ii. experimental study of the yield stress and wall effects for concentrated oil-in-water emulsions. *Colloid Interface Sci.*, 105 :150–171, 1985.
- [52] Barnes H. A. A review of the slip (wall depletion) of polymer solutions, emulsions and particle suspensions in viscosimeters : Its cause, character, and cure. J. Non-Newtonian Fluid Mech., 56 :221–251, 1995.
- [53] H. Rehage and H. Hoffmann. Rheological properties of viscoelastic surfactant systems. J. Phys. Chem., 92(16) :4712–4719, 1988.
- [54] J.-F. Berret, D. C. Roux, and P. Lindner. Structure and rheology of concentrated wormlike micelles at the shear-induced isotropic-to-nematic transition. *Eur. Phys. J. B*, 5(1):67–77, 1998.
- [55] E. Cappelaere, J.-F. Berret, J. P. Decruppe, R. Cressely, and P. Lindner. Rheology, birefringence, and small-angle neutron scattering in a charged micellar system : Evidence of a shear-induced phase transition. *Phys. Rev. E*, 56(2) :1869–1878, 1997.

- [56] J.-F. Berret and D. C. Roux. Rheology of nematic wormlike micelles. J. Rheol., 39(4):725– 741, 1995.
- [57] E. Fischer and P. T. Callaghan. Is a birefringence band a shear band? *Eur. Phys. Lett.*, 50(6) :803–809, 2000.
- [58] P. T. Callaghan. Principles of nuclear magnetic resonance microscopy. Oxford University Press, New York, 1991.
- [59] J. B. Salmon, S. Manneville, A. Colin, and B. Pouligny. An optical fiber based interferometer to measure velocity profiles in sheared complex fluids. *Eur. Phys. J.-Appl. Phys.*, 22(2) :143–154, 2003.
- [60] J. B. Salmon, S. Manneville, A. Colin, and B. Pouligny. An optical fiber based interferometer to measure velocity profiles in sheared complex fluids. *Eur. Phys. J.*, 22 :143–154, 2003.
- [61] J. B. Salmon. Ecoulement d'une phase lamellaire lyotrope : rhéochaos, systèmes dynamiques et vélocimétrie locale. thèse de doctorat, 2003.
- [62] S. Lerouge, J. P. Decruppe, and J.-F. Berret. Correlations between rheological and optical properties of a micellar solution under shear banding flow. *Langmuir*, 16(16):6464–6474, 2000.
- [63] J. Y. Lee, G. G. Fuller, N. E. Hudson, and X. F. Yuan. Investigation of shear-banding structure in wormlike micellar solution by point-wise flow-induced birefringence measurements. *J. Rheol.*, 49(2) :537–550, 2005.
- [64] E. Guyon, J.-P. Hulin, and L. Petit. Hydrodynamique physique. CNRS éditions, 1996.
- [65] R.G. Larson. Instabilities in viscoelastic flows. Rheol. Acta, 31:213, 1992.
- [66] C. D. Andereck, S. S. Liu, and H. L. Swinney. Flow regimes in a circular couette system with independently rotating cylinders. J. Fluid Mech., 164 :155–183, 1986.
- [67] F. Charru. Instabilités hydrodynamiques. CNRS éditions, EDP science, 2007.
- [68] S. A. Thorpe. An album of fluid motion. J. Fluid Mech., 46:299–319, 1971.
- [69] F. Charru and P. Barthelet. Secondary instabilities of interfacial waves due to coupling with a long wave mode in a two-layer couette flow. *Physica D*, 125 :311, 1999.
- [70] E. Hinch. A note on the mechanism of the instability at the interface between two shearing fluids. J. Fluid Mech., 144 :463, 1984.
- [71] B. Meulenbroek, C. Storm, V. Bertola, C. Wagner, D. Bonn, and W. Van Saarloos. Origin of melt fracture in polymer extrusion : a weakly nonlinear subcritical instability of viscoelastic poiseuille flow. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :024502, 2003.
- [72] V. Bertola, B. Meulenbroek, C. Wagner, C. Storm, W. van Saarloos, and D. Bonn. Melt fracture in polymer extrusion. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :114502, 2003.
- [73] K. Weissenberg. Nature, 159 :310, 1947.
- [74] S.J. Mueller, R.G. Larson, and E.S.G. Shaqfeh. A purely elastic transition in taylor-couette flow. *Rheol. Acta*, 28 :499, 1989.
- [75] H. Giesekus. Die elastizität von flüssigkeiten. Rheologica Acta, 5:29, 1966.
- [76] H. Giesekus. Rheologica Acta, 5:239, 1966.
- [77] Alexander N. Morozov and Wim van Saarloos. An introductory essay on subcritical instabilities and the transition to turbulence in visco-elastic parallel shear flows. *Physics Reports*, 447(3-6) :112 – 143, 2007.

- [78] R.G. Larson, E.S.G. Shaqfeh, and S.J. Mueller. A purely elastic instability in taylor-couette flow. J. Fluid Mech., 218 :573, 1990.
- [79] P. Pakdel and G.H. McKinley. Elastic instability and curved streamlines. Phys. Rev. Lett., 77 :2459, 1996.
- [80] G.H. McKinley, P. Pakdel, and A. Oztekin. Geometric and rheological scaling of purely elastic flow instabilities. J. Non Newtonian Fluid Mech., 67:19, 1996.
- [81] R.G. Larson, S.J. Mueller, and E.S.G. Shaqfeh. The effects of fluid rheology on the elastic taylor-couette instability. J. non Newt. Fluid Mech., 51 :195–225, 1994.
- [82] S. Lerouge, M. A. Fardin, M. Argentina, G. Grégoire, and O. Cardoso. Interface dynamics in shear-banding flow of giant micelles. *Soft Matter*, (4) :1808, 2006.
- [83] E. Cappelaere, R. Cressely, and J. P. Decruppe. Linear and nonlinear rheological behavior of salt-free aqueous ctab solutions. *Coll. and Surf. Phys. and Eng. Asp.*, 104(2-3):353–374, 1995.
- [84] E. Cappelaere and R. Cressely. Shear banding structure in viscoelastic micellar solutions. Coll. and Polym. Sci., 275(5):407–418, 1997.
- [85] U. Olsson, O. Soderman, and P. Guering. Characterization of micellar agregates in viscoelastic surfactant solutions. *Journal of Physical Chemistry*, 90(21) :5223–5232, 1986.
- [86] J.-F. Berret, J. Appell, and G. Porte. Linear rheology of entangled wormlike micelles. Langmuir, 9 :2851–2854, 1993.
- [87] J.-F. Berret. Transient rheology of wormlike micelles. Langmuir, 13(8):2227–2234, 1997.
- [88] J.-F. Berret, G. Porte, and J. P. Decruppe. Inhomogeneous shear flows of wormlike micelles : A master dynamic phase diagram. *Phys. Rev E*, 55(2) :1668–1676, 1997.
- [89] P. Fischer and H. Rehage. Non-linear flow properties of viscoelastic surfactant solutions. *Rheol. Acta*, 36(1) :13–27, 1997.
- [90] C. Grand, J. Arrault, and M. E. Cates. Slow transients and metastability in wormlike micelle rheology. J. Phys. II, 7(8) :1071–1086, 1997.
- [91] H. Hoffmann, H. Löbel, H. Rehage, and I. Wunderlich. Rheology of surfactant solutions. Tenside detergents, 22 :290–298, 1985.
- [92] A. F. Mendez-Sanchez, M. R. Lopez-Gonzalez, V. H. Rolon-Garrido, J. Perez-Gonzalez, and L. de Vargas. Instabilities of micellar systems under homogeneous and non-homogeneous flow conditions. *Rheol. Acta*, 42(1-2) :56–63, 2003.
- [93] O. Radulescu, P. D. Olmsted, J. P. Decruppe, S. Lerouge, J.-F. Berret, and G. Porte. Time scales in shear banding of wormlike micelles. *Eur. Phys. Lett.*, 62(2) :230–236, 2003.
- [94] J. P. Decruppe, S. Lerouge, and J.-F. Berret. Insight in shear banding under transient flow. *Phys. Rev. E*, 63(2) :022501, 2001.
- [95] S. Lerouge, J. P. Decruppe, and P. Olmsted. Birefringence banding in a micellar solution or the complexity of heterogeneous flows. *Langmuir*, 20(26) :11355–11365, 2004.
- [96] B. A. Schubert, N. J. Wagner, E. W. Kaler, and S. R. Raghavan. Shear-induced phase separation in solutions of wormlike micelles. *Langmuir*, 20(9) :3564–3573, 2004.
- [97] I. A. Kadoma and J. W. vanEgmond. "Tuliplike" scattering patterns in wormlike micelles under shear flow. *Phys. Rev. Lett.*, 76(23) :4432–4435, 1996.
- [98] A. Groisman and V. Steinberg. Elastic turbulence in a polymer solution flow. Nature, 405:53, 2000.

- [99] A. Groisman and V. Steinberg. Elastic turbulence in curvilinear flows of polymer solutions. New J. of Physics, 6 :29, 2004.
- [100] E. Helfand and G. H. Fredrickson. Large fluctuations in polymer-solutions under shear. Phys. Rev. Lett., 62(21) :2468–2471, 1989.
- [101] S. M. Fielding and P. D. Olmsted. Flow phase diagrams for concentration-coupled shear banding. Eur. Phys. J. E, 11(1):65–83, 2003.
- [102] I. A. Kadoma and J. W. vanEgmond. Shear-enhanced orientation and concentration fluctuations in wormlike micelles : Effect of salt. *Langmuir*, 13(17) :4551–4561, 1997.
- [103] S. Lerouge, J. P. Decruppe, and C. Humbert. Shear banding in a micellar solution under transient flow. *Phys. Rev. Lett.*, 81(24) :5457–5460, 1998.
- [104] T. Shikata, S. J. Dahman, and D. S. Pearson. Rheooptical behavior of wormlike micelles. Langmuir, 10(10) :3470–3476, 1994.
- [105] M. R. Lopez-Gonzalez, W. M. Holmes, and P. T. Callaghan. Rheo-nmr phenomena of wormlike micelles. Soft Matter, 2(10) :855–869, 2006.
- [106] J. F. A. Soltero, F. Bautista, J. E. Puig, and O. Manero. Rheology of cetyltrimethylammonium p-toluenesulfonate-water system. 3. nonlinear viscoelasticity. *Langmuir*, 15(5):1604– 1612, 1999.
- [107] S. M. Fielding. Linear instability of planar shear banded flow. Phys. Rev. Lett., 95(13):134501, 2005.
- [108] S. M. Fielding and P. D. Olmsted. Nonlinear dynamics of an interface between shear bands. *Phys. Rev. Lett.*, 96(10) :104502, 2006.
- [109] S. M. Fielding. Vorticity structuring and velocity rolls triggered by gradient shear bands. *Phys. Rev. E*, 76(1) :016311, 2007.
- [110] M. R. Lopez-Gonzalez, W. M. Holmes, P. T. Callaghan, and P. J. Photinos. Shear banding fluctuations and nematic order in wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, 93(26):268302, 2004.
- [111] M. A. Fardin, B. Lasne, O. Cardoso, G. Grégoire, M. Argentina, J. P. Decruppe, and S. Lerouge. Taylor-like vortices in shear-banding flow of giant micelles. *Phys. Rev. Lett.*, 103(2) :028302, 2009.
- [112] P. Barthelet and F. Charru. Benjamin-feir and eckhaus instabilities with galilean invariance : the case of interfacial waves in viscous shear flows. *Eur. J. Mech. B*, 17 :1, 1998.
- [113] F. Charru and E.J. Hinch. 'phase diagram' of interfacial instabilities in a two-layer couette flow and mechanism for the long-wave instability. J. Fluid Mech., 414 :195, 2000.
- [114] E. Hinch, O. J. Harris, and J. M. Rallison. The instability mechanism for two elastic liquids being co-extruded. J. Non-N. Fluid Mech., 43:311–324, 1992.
- [115] P. D. Olmsted, O. Radulescu, and C. Y. D. Lu. Johnson-segalman model with a diffusion term in cylindrical couette flow. J. Rheol., 44(2) :257–275, 2000.
- [116] R.G. Larson. Turbulence without inertia. Nature, 405:27, 2000.
- [117] M.D. Graham. Effect of axial flow on viscoelastic taylor-couette instability. J. Fluid Mech., 360:341, 1998.
- [118] W. M. Holmes, M. R. Lopez-Gonzalez, and P. T. Callaghan. Fluctuations in shear-banded flow seen by nmr velocimetry. *Eur. Phys. Lett.*, 64(2) :274–280, 2003.
- [119] P. Ballesta, M. P. Lettinga, and S. Manneville. Superposition rheology of shear-banding wormlike micelles. J. Rheol., 51(5) :1047–1072, 2007.

- [120] C. Masselon, J. B. Salmon, and A. Colin. Nonlocal effects in flows of wormlike micellar solutions. *Phys. Rev. Lett.*, 1(3) :38301, 2008.
- [121] H. J. Wilson and S. M. Fielding. Linear instability of planar shear banded flow of both diffusive and non-diffusive johnson-segalman fluids. J. Non-Newt. Fluid Mech., 138(2-3):181–196, 2006.
- [122] C. Y. D. Lu, P. D. Olmsted, and R. C. Ball. Effects of nonlocal stress on the determination of shear banding flow. *Phys. Rev. Lett.*, 84(4) :642–645, 2000.
- [123] H. J. Wilson. Instabilities and constitutive modelling. Philosophical Transactions of the Royal Society a-Mathematical Physical and Engineering Sciences, 364(1849) :3267–3283, 2006.
- [124] R. Granek and M. E. Cates. Stress relaxation in living polymers : results from a poisson renewal model. J. Chem. Phys., 96(6) :0021–9606, 1992.
- [125] S. Manneville P. Lettinga. www.fz-juelich.de/iff/datapool/iwm/USVBandingV7.pdf, 2009. non-publié.
- [126] R. W. Mair and P. T. Callaghan. Shear flow of wormlike micelles in pipe and cylindrical couette geometries as studied by nuclear magnetic resonance microscopy. J. Rheol., 41(4) :901–924, 1997.
- [127] Y. Auffrey. Microscopic and Macroscopic Properties of AOT/Iso-octane/Water Sheared Lyotropic Lamellar Phases. thèse de l'université de Grenoble, 2008.
- [128] S. H. Strogatz. Non-linear dynamics and chaos : with applications to physics, biology, chemistry and engineering. Addison-Wesley, 1994.
- [129] P. Bergé, Y. Pomeau, and C. Vidal. L'ordre dans le chaos. Hermann, 1984.
- [130] H. G. Schuster. *Deterministic chaos.* VCH, 1988.
- [131] P. Manneville. Dynamique non-linéaire et chaos. Ecole polytechnique, 2002.
- [132] R. Bandyopadhyay and A. K. Sood. Effect of screening of intermicellar interactions on the linear and nonlinear rheology of a viscoelastic gel. *Langmuir*, 19(8) :3121–3127, 2003.
- [133] R. Ganapathy and A. K. Sood. Tuning rheochaos by temperature in wormlike micelles. Langmuir, 22(26) :11016–11021, 2006.
- [134] R. Ganapathy and A. K. Sood. Nonlinear flow of wormlike micellar gels : Regular and chaotic time-dependence of stress, normal force and nematic ordering. J. Non-Newt. Fluid Mech., 149(1-3) :78–86, 2008.
- [135] P. Pimenta and E. E. Pashkovski. Rheology of viscoelastic mixed surfactant solutions : Effect of scission on nonlinear flow and rheochaos. *Langmuir*, 22(9) :3980–3987, 2006.
- [136] R. Bandyopadhyay and A. K. Sood. Chaotic dynamics in shear-thickening surfactant solutions. *Eur. Phys. Lett.*, 56(3):447–453, 2001.
- [137] J. B. Salmon, A. Colin, and D. Roux. Dynamical behavior of a complex fluid near an out-ofequilibrium transition : Approaching simple rheological chaos. *Phys. Rev. E*, 66(3) :031505, 2002.
- [138] S. Manneville, J. B. Salmon, and A. Colin. A spatio-temporal study of rheo-oscillations in a sheared lamellar phase using ultrasound. *Eur. Phys. J. E*, 13(2) :197–212, 2004.
- [139] A. S. Wunenburger, A. Colin, J. Leng, A. Arneodo, and D. Roux. Oscillating viscosity in a lyotropic lamellar phase under shear flow. *Phys. Rev. Lett.*, 86(7) :1374–1377, 2001.

- [140] L. Courbin, P. Panizza, and J. B. Salmon. Observation of droplet size oscillations in a two-phase fluid under shear flow. *Phys. Rev. Lett.*, 92(1) :018305, 2004.
- [141] D. Lootens, H. Van Damme, and P. Hebraud. Giant stress fluctuations at the jamming transition. *Phys. Rev. Lett.*, 90(17) :178301, 2003.
- [142] Y. Pomeau and P. Manneville. Intermittent transition to turbulence in dissipative dynamical systems. Commun. Math. Phys., 74 :189, 1980.
- [143] H. S. Greenside, G. Ahlers, P. C. Hohenberg, and R. W. Walden. A simple stochastic-model for the onset of turbulence in rayleigh-benard convection. *Physica D* 5, 322, 1982.
- [144] J.-P. Eckmann and D. Ruelle. Ergodic theory of chaos and strange attractors. Reviews of modern physics, 57, 1985.
- [145] F. Takens. Detecting strange attractors in turbulence. Lect. Notes Math., 898:366, 1981.
- [146] R. Hegger, H. Kantz, and T. Schreiber. Practical implementation of nonlinear time series methods : the tisean package. Le package TISEAN peut être téléchargé depuis http://www.mpipks-dresden.mpg.de/ tisean/, 1998.
- [147] P. Grassberger and I. Procaccia. Characterization of strange attractors. Phys. Rev. Lett., 50 :346, 1983.
- [148] S. Lerouge. thèse de l'université de Metz, 2000.
- [149] S. M. Fielding. Viscoelastic taylor-couette instability of shear banded flow. Phys. Rev. Lett., 2010.
- [150] P. Ballesta and S. Manneville. Signature of elasticity in the Faraday instability. *Phys. Rev.* E, 71 :026308, 2005.
- [151] Prashant Tapadia and Shi-Qing Wang. Direct visualization of continuous simple shear in non-newtonian polymeric fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 96(1):016001, 2006.

Table des figures

| 1.1 | Composantes du tenseur des contraintes. Le principe de conservation du moment cinétique implique $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$. | 15 |
|------|--|----|
| 1.2 | Cisaillement simple entre deux plaques parallèles distantes de $e.$ | 16 |
| 1.3 | Cisaillement d'un matériau entre deux plaques parallèles de surface S distantes de e [32]. (a) déformation γ d'un solide parfait, (b) cisaillement $\dot{\gamma}$ d'un fluide simple imposé par la plaque supérieure. Issue de [32] | 16 |
| 1.4 | Représentation schématique du modèle de Maxwell : association en série d'un ressort (le solide, de module élastique G_0) et d'un amortisseur visqueux (le fluide, de viscosité η_0) | 17 |
| 1.5 | Courbes d'écoulement schématiques pour différents types de fluides | 17 |
| 1.6 | La morphologie des objets formés par les molécules de tensio-actifs dépend de la concentration. Les micelles ne peuvent se former qu'à partir d'une concentration critique (CMC_I) où elles sont sphériques. Puis à partir de CMC_{II} , les micelles sont cylindriques avec des extrémités en forme de calotte hémisphérique. À partir de la concentration C [*] , la longueur et la densité des micelles sont suffisantes pour qu'elles s'enchevêtrent. | 19 |
| 1.7 | Illustration schématique des différents types de phases rencontrées dans les sys- tèmes micellaires en fonction des concentrations en tensio-actifs et sel. Figure empruntée à la référence [8] | 19 |
| 1.8 | La figure de gauche montre une courbe d'écoulement schématique pour un système rhéofluidifiant de micelles géantes. Deux structures micellaires coexistent sur le plateau : l'une fluide présente des micelles fortement alignées dans la direction de l'écoulement, l'autre plus visqueuse présente un faible alignement des micelles. La figure de droite présente le profil de vitesse dans l'entrefer ; la ligne en pointillés correspond à un écoulement homogène | 21 |
| 1.9 | Profils de vitesse schématiques d'écoulements hétérogènes. Issue de [32] | 21 |
| 1.10 | Expérience de biréfringence dans une cellule de Couette d'entrefer 1 mm contenant une solution de CPCl-Hex (fractions massiques : $\phi_{CPCl}=28\%$, $\phi_{Hex}=3,9\%$). Un faisceau de lumière polarisée traverse l'échantillon dans la direction de la vorticité. Le polariseur et l'analyseur sont placés de telle sorte que sorte que la bande proche du stator apparaisse sombre. De A à F, lorsque l'on augmente le cisaillement, la phase induite devient plus importante et finit par remplir l'entrefer. Issue de [8]. | 22 |
| | | |

| 1.11 | Comparaison de deux solutions de CPCl/Hex sous écoulement. La solution à gauche ($\phi_{CPCl}=28\%$, $\phi_{Hex}=3,9\%$) est isotrope au repos et la photographie est prise pour un cisaillement de 220 s ⁻¹ correspondant à la seconde branche. La solution de droite est nématique au repos ($\phi_{CPCl}=29,1\%$, $\phi_{Hex}=4,1\%$) et sur la photographie, elle est cisaillée à 8,9 s ⁻¹ . Pour réduire l'intensité transmise un filtre vert a été placé sur le chemin optique. Issue de [8]. | 23 |
|------|--|----|
| 1.12 | Intensité diffusée de neutrons dans le plan vitesse - vorticité $(\vec{v}, \vec{\omega})$ sur une solution de CPCl/Hex à une concentration proche de la transition isotrope-nématique [2,54]. Les cisaillements sont $\dot{\gamma}=0$ (17a), 64 (17b) et 213 s ⁻¹ (17c). La figure de diffraction (18) est obtenue pour une phase nématique à $\dot{\gamma}=100 \text{ s}^{-1}$ [56]. Le maximum de diffusion $q^* \sim 0, 1 \text{ Å}^{-1}$ provient des interactions stériques entre micelles. Issue de [56]. | 23 |
| 1.13 | Spectre obtenu par résonance magnétique nucléaire (RMN) sur le système concen- tré, $\phi = 20\%$, CTAB/D ₂ O pour différentes positions dans l'entrefer. Le double pic dans la région proche du rotor indique une phase nématique, tandis que le pic proche du stator semble indiquer une phase isotrope. Issue de [57]. | 24 |
| 1.14 | Profils de vitesse moyens mesurés par diffusion dynamique hétérodyne de la lu- mière [61] pour différents cisaillements sur CPCl/NaSal 6% dans de l'eau salée à $0,5 \text{ M}$ à $21,5^{\circ}$ C. Le plateau s'étend de $2,5 \text{ à } 26 \text{ s}^{-1}$. La position y=0 mm marque la position du cylindre intérieur tournant et y=1 mm la position du cylindre extérieur fixe. Issue de [23] | 24 |
| 1.15 | Représentation du cisaillement local $\dot{\gamma}(y,t)$ en niveaux de gris, déterminé par me- sures de vélocimétrie ultra-sonore. Le noir correspond à $\dot{\gamma}=0$ s ⁻¹ et le blanc à $\dot{\gamma} \ge 120$ s ⁻¹ . Les positions $y = 0$ et $y = 1$ mm correspondent respectivement à la position du cylindre tournant et du cylindre fixe. Le système CTAB/D ₂ O $\phi_{\text{CTAB}}=20\%$ à T=41°C subit un cisaillement fixe de 50 s ⁻¹ . Issue de [26] | 25 |
| 1.16 | Profils de vitesse en fonction du temps enregistrés à une seconde d'intervalle en utilisant la RMN rapide dans une cellule de Couette d'1 mm d'entrefer. Le cisaillement imposé est de 37 s ⁻¹ et le cylindre intérieur tournant est à droite, le fixe à gauche. Les niveaux de gris indiquent la norme de la vitesse de 0 à 25 mm.s ⁻¹ . La résolution spatiale est de 100 μ m. Le système est CPCl/NaSal 10% au ratio molaire R=[Sal]/[CPCl]=0,5 dans de l'eau salée à 0,5 M à une température de 25°C. Issue de [27]. | 26 |
| 1.17 | Observation de la diffusion de la lumière d'une nappe laser radiale par CTAB (0,3 M)/NaNO ₃ (0,405 M) dans l'entrefer. Le cylindre intérieur tournant se situe sur la gauche des images et le fixe à droite. Le cisaillement imposé est de 30 s ⁻¹ . L'interface entre les bandes de cisaillements est ondulée à l'état stationnaire. Issue de [4] | 27 |
| 1.18 | Schéma de la structure en rouleaux de l'instabilité de Taylor-Couette. Le cylindre intérieur tourne et le cylindre extérieur est fixe. La force centrifuge génère un écou- lement secondaire sous forme de rouleaux toroïdaux empilés suivant la vorticité. Le diamètre des rouleaux est toujours celui de l'entrefer. Figures issues de [65] et http://www.mech.northwestern.edu/fac/lueptow/TC_Rich_new.html | 28 |

- 1.20 Régimes observés dans l'écoulement entre deux cylindres concentriques, avec $R_i = \frac{R_1(R_2-R_1)\Omega_i}{\nu}$ et $R_o = \frac{R_2(R_2-R_1)\Omega_o}{\nu}$. Cette figure est empruntée à la référence [66]. 29
- 1.21 Instabilité de Kelvin-Helmholtz entre deux couches de fluide de différentes vitesses. Sur la photographie en haut : expérience réalisée par Thorpe [68] d'écoulement sur un plan incliné de deux fluides de différente densité. Sur la photographie du bas, l'instabilité se développe entre deux masses d'air de différentes altitudes et vitesses. Images extraites de [64] et http://www.extremeinstability.com. 30

1.22 À gauche : schéma de la cellule annulaire contenant les deux fluides. À droite : coupe longitudinale représentant l'instabilité interfaciale au-delà d'une vitesse U critique de la plaque supérieure. Figures extraites de [69].
31

- 1.24 Deux manifestations de la présence des contraintes normales dans les fluides viscoélastiques. À gauche : photographie d'un jet d'une solution de polymères à la sortie d'un canal. La pression augmente en allant vers la droite. Des irrégularités apparaissent dans le jet précédant la fracture [71,72]. Issue de http://www.ilorentz.org/ saarloos/Patternf/meltfracture.html. À droite : l'effet Weissenberg fait grimper le fluide le long de l'axe tournant (http://web.mit.edu/nnf/research/phenomena/rodclimbing.html). 3

- 2.1 Schéma du dispositif expérimental de la cellule de Couette. Les deux types d'éclairage sont utilisés pour visualiser l'interface avec la CCD1, ainsi que pour visualiser l'écoulement avec la CCD2. Le schéma de droite présente une vue du dessus de la cellule avec la recirculation d'eau permettant la thermostatation de l'échantillon.
 37

| 2.3 | Schéma du cône-plan utilisé pour les mesures des contraintes normales. $\theta_0 = 0.5^{\circ}$ et $R = 2.5$ cm. L'échantillon est placé entre le cône et le plan, dans la zone en gris clair | 38 |
|------|--|-----------------|
| 2.4 | G': module élastique ou de stockage, G'': module visqueux ou de perte pour le système CPCl/NaSal 8% à 22°C en fonction de la pulsation ω (à gauche). La déformation imposée est de 5%. Diagramme Cole-Cole à droite. Le demi-cercle, obtenu pour $0, 1 \leq \omega \leq 20 \text{ s}^{-1}$, est caractéristique d'un système Maxwellien. Les ajustements sont réalisées pour $0, 1 \leq \omega \leq 20 \text{ s}^{-1}$ et les paramètres d'ajustements sont $G_0=124,7\pm0,5$ Pa et $\tau_{Maxwell}=0.65\pm0.01$ s. | 40 |
| 2.5 | Réponse en contrainte du système CTAB/NaNO ₃ à 28°C pour un cisaillement de 10 s^{-1} . Les fluctuations relatives de la contrainte deviennent inférieures à 0,5% au bout de 3 minutes, l'état stationnaire en contrainte est alors considéré atteint au bout de cette durée. | 42 |
| 2.6 | Courbes d'écoulement de CTAB(0,3 M)/NaNO ₃ (0,405 M) à 28°C obtenues en cône-plan (\blacktriangle) et Couette (\bullet). Le temps de mesure par point est de 30 s en cône-plan et 180 s en Couette. Le plateau en contrainte commence à $\dot{\gamma}_1=4,9\pm0,2$ s ⁻¹ pour une contrainte $\sigma_p = 146\pm0, 6$ Pa et finit à $\dot{\gamma}_2=91\pm5$ s ⁻¹ . $\dot{\gamma}_+=56\pm3$ s ⁻¹ marque le changement de pente du plateau (valeurs indiquées pour la géométrie Couette | |
| 2.7 | en rouge) | 42 |
| 2.8 | Réponse en contrainte du système CPCl/NaSal 10% à 22°C pour un cisaillement de 4 s ⁻¹ . Les fluctuations de la contrainte cessent au bout de 3 minutes, l'état | 44 |
| 2.9 | stationnaire en contrainte est atteint avec certitude au bout de cette duree Diagramme d'écoulement pour les différentes concentrations de CPCl/NaSal à 22°C. La contrainte normalisée par le module plateau G_0 est tracée en fonction du taux de cisaillement normalisé par le temps de Maxwell, $\dot{\gamma}\tau_{Maxwell}$. Chaque courbe est définie par 200 points de mesure. Le temps d'acquisition pour chaque point de mesure est de 5 minutes pour le 14% et 3 minutes pour les autres concentrations. | 44 |
| 2.10 | Variation de la contrainte sur le plateau attendue en raison de la géométrie (\blacksquare) et variation de la contrainte mesurée (\blacktriangle) en fonction de la fraction massique totale. | 44 |
| 2.11 | Évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les différentes concentrations de CPCl/NaSal à 22°C. La figure de droite montre un agrandis- sement à haut cisaillement. On distingue une augmentation de la viscosité sur la seconde branche. Cette augmentation est limitée en raison de l'importance de | |
| 2.12 | l'effet Weissenberg aux hauts cisaillements | 45 46 |
| 3.1 | Courbe d'écoulement de CTAB/NaNO ₃ à 28°C. Elle est composée de 200 points de mesure répartis sur une rampe logarithmique. Le temps d'acquisition est de 180 s par point. Les images de l'entrefer sont prises en <i>configuration 1</i> pour différents cisaillements à l'état stationnaire. Le plateau rhéofluidifiant est délimité par $i = 4.8 \pm 0.6$ c ⁻¹ et $i = 0.2 \pm 5$ c ⁻¹ | 50 |
| 3.2 | $\gamma_1=4.8\pm0.0$ s ⁻ et $\gamma_2=92\pm5$ s ⁻ Règle du levier pour CTAB/NaNO ₃ à 28°C | $\frac{50}{51}$ |

| 3.3 | Observation de l'entrefer avec la <i>configuration 1</i> . On impose $\dot{\gamma}=30$ s ⁻¹ à t=0 s. Le rotor se situe sur la gauche des images et le stator à droite. Les images sont prises à la fréquence de 5 par seconde | 50 |
|------|--|----------|
| 3.4 | Représentation schématique de la construction d'un diagramme spatiotemporel. Un programme détecte sur chaque image la position de l'interface dans l'entrefer. | 52 |
| 3.5 | Diagrammes spatiotemporels de CTAB/NaNO ₃ à 28°C pour un cisaillement de : (a) 7 s ⁻¹ , (b) 40 s ⁻¹ et (c) 70 s ⁻¹ . La position de l'interface dans l'entrefer est donnée en niveaux de gris. Le blanc correspond à la position de l'interface proche du rotor, tandis que le noir correspond à celle proche du stator. On distingue trois | 52 |
| 3.6 | À gauche : diagramme spatiotemporel extrait de celui à 40 s ⁻¹ montrant l'oscilla- tion des minima de l'interface. Au centre : intensité lumineuse diffusée au niveau d'un minimum de l'interface à $z_0 \approx 2$ cm en fonction du temps. À droite : évolution de la période d'oscillation des minima (•) et la période de rotation du cylindre intérieur (\blacktriangle) avec le cisaillement. Les barres d'erreur sont évaluées sur 30 périodes | 00 |
| 3.7 | et sont plus petites que les symboles. Cette période ne varie pas avec $\dot{\gamma}$ Représentation des différents comportements de l'interface entre les bandes de cisaillement sur le plateau de CTAB/NaNO ₃ . La région (b), s'étendant de 10 s ⁻¹ à $\dot{\gamma}_{+}=56\pm3$ s ⁻¹ , présente un motif stable spatialement. Les régions (a) et (c), s'étendant respectivement de $\dot{\gamma}_{1}=4,8\pm0,6$ s ⁻¹ à 10 s ⁻¹ , et de $\dot{\gamma}_{+}=56\pm3$ s ⁻¹ à | 53 |
| 3.8 | $\dot{\gamma}_2=92\pm5 \text{ s}^{-1}$, présentent des motifs instables spatialement. $\dot{\gamma}_2=92\pm5 \text{ s}^{-1}$, présentent des motifs instables spatialement. À droite : longueur d'onde en fonction du cisaillement. Au-delà de 60 s ⁻¹ , la longueur d'onde motif de l'interface évolue avec le temps à l'état stationnaire. | 54 55 |
| 3.9 | Réponse en contrainte à un taux de cisaillement de 30 s^{-1} imposé à t = 0 s. À droite, nous avons agrandi la région de l' <i>undershoot</i> correspondant au démarrage de l'instabilité. | 56 |
| 3.10 | Corrélation des temps d'inflexion extraits de la réponse en contrainte τ_1 (•) et de début de déstabilisation de l'interface τ_2 (•) [4] | 56 |
| 3.11 | Réponse en contrainte à un taux de cisaillement imposé de 20 s^{-1} (à gauche) et 70 s^{-1} (à droite). Le bruit dans la contrainte augmente avec le cisaillement | 57 |
| 3.12 | Simulation numérique, basée sur le modèle diffusif de Johnson-Segalman, de la réponse en contrainte (T_{xy}) à un taux de cisaillement imposé d'un système visco- élastique en bandes de cisaillement. La réponse transitoire présente un <i>undershoot</i> caractéristique du développement de l'instabilité de l'interface, observé expéri- mentalement lors du développement de l'instabilité. Figure empruntée à la réfé- | |
| 3.13 | rence [109] | 57 |
| | de cellule : 1, 2, 3 et 4 cm | 58 |
| 3.14 | Evolution de l'amplitude (à gauche) et de la longueur d'onde (à droite) du motif avec le cisaillement pour les quatre hauteurs testées. | 59 |
| 3.15 | Diagrammes spatiotemporels pour une cellule de 1 cm de hauteur et de 1,13mm d'entrefer. (a) 25 s^{-1} , (b) 30 s^{-1} , (c) 45 s^{-1} , (d) 50 s^{-1} . Les points noirs espacés régulièrement correspondent au passage d'une bulle d'air dans le champ d'obser- | |
| | vation | 59 |

| 3.16 | Réponses en contrainte : (a) à $\dot{\gamma}=20 \text{ s}^{-1}$ avec une hauteur de cellule de 1 cm, (b,c) à $\dot{\gamma}=10$ et 50 s ⁻¹ avec une hauteur de cellule de 2 cm et (d,e) à $\dot{\gamma}=15$ et 40 s ⁻¹ avec une hauteur de cellule de 3 cm. | 60 |
|------|--|----|
| 3.17 | Proportion occupée dans l'entrefer par la phase turbide en fonction du taux de cisaillement pour les trois rayons intérieurs, respectivement 13,33 mm, 12,46 mm et 11,96 mm. | 61 |
| 3.18 | À gauche : amplitude du motif en fonction du taux de cisaillement. À droite : longueur d'onde du motif normalisée par la taille de l'entrefer en fonction du taux de cisaillement pour trois rayons intérieurs, respectivement 13,33 mm, 12,46 mm et 11,96 mm | 62 |
| 3.19 | Évolution de la période des oscillations des minima de l'interface en fonction de $\dot{\gamma}$ pour les géométries de hauteur variable, sur la figure de gauche, et pour les différents rayons intérieurs, sur la figure de droite. Si la période des oscillations ne semble pas influencée par la hauteur, en revanche, sa dépendance avec le rayon intérieur apparaît très clairement. Les barres d'erreur sont évaluées sur 30 périodes d'oscillation et sont plus petites que les symboles | 62 |
| 3.20 | Observation de l'entrefer avec l'éclairage laser. À $t = 0$ s, on impose la contrainte, $\sigma = 164$ Pa correspondant à un cisaillement stationnaire de 38 s ⁻¹ . Le rotor se situe sur la gauche des images et le stator à droite. | 63 |
| 3.21 | À gauche : réponses en cisaillement sur le plateau. À droite : Signature mécanique de l'instabilité pour σ =161,4 Pa. Ajustement de la croissance linéaire en rouge. Ajustement monoexponentiel en bleu. | 64 |
| 3.22 | Corrélation des temps relevés dans la réponse en cisaillement τ_1 (•) et de début de déstabilisation de l'interface τ_2 (•) en fonction de la contrainte imposée | 64 |
| 3.23 | Pentes (A) et temps caractéristiques de la déstabilisation (•) extrait de la réponse en contrainte à cisaillement imposé (à gauche) et de la réponse en cisaillement à contrainte imposée (à droite). Les paramètres d'ajustement caractérisant la signa- ture mécanique présentent une grande sensibilité au paramètre de contrôle | 65 |
| 3.24 | Diagrammes spatiotemporels de CTAB $(0,3 \text{ M})$ /NaNO $_3(0,405 \text{ M})$ à 28°C à contrainte imposée. La durée des expériences est de 10 minutes. Les contraintes imposées sont : (a) 145,5 Pa, (b) 155,2 Pa, (c) 161,4 Pa et (d) 172,6 Pa. (a), (b) et (c) sont dans le régime de comportement 3.7 (b) et (d) dans le régime 3.7 (c) | 65 |
| 3.25 | À gauche : longueur d'onde asymptotique du motif en fonction de la contrainte imposée. À droite : amplitude du motif en fonction de la contrainte imposée | 66 |
| 3.26 | Évolution de la période d'oscillation des minima de l'interface à contraintes impo- sées et cisaillements imposés. Les barres d'erreur sont évaluées sur 30 périodes. | 66 |
| 3.27 | Réponses en contrainte : (a) de 6,3% à 12 s ⁻¹ , (b) de 8% à 10 s ⁻¹ , (c) de 10% à 7 s ⁻¹ et (d) de 12% à 6 s ⁻¹ . Le temps d'acquisition est de 0,06 s par point | 67 |
| 3.28 | Série de photographies de l'entrefer prises sur CPCl/NaSal 8% à 22°C à un ci- saillement imposé est de 10 s ⁻¹ . Avant l'apparition des bandes de cisaillement, la turbidité est fortement inhomogène dans l'entrefer. | 68 |
| 3.29 | Photographies de l'entrefer sur CPCl/NaSal 6,3% à 14 s ⁻¹ , 8% à 12 s ⁻¹ , 10% à 10 s ⁻¹ , 12% à 8 s ⁻¹ et 14% à 10 s ⁻¹ à 22°C. Ce dernier présente une structure filamentaire très fluctuante. La largeur de chaque image correspond à la largeur | |
| | de l'entrefer (1,13 mm). | 68 |

| 3.30 | Diagrammes spatiotemporels de l'interface pour CPCl/NaSal 10% à 22°C. (a) 3 s ⁻¹ , (b) 6 s ⁻¹ , (c) 10 s ⁻¹ , (d) 16 s ⁻¹ , (e) 18 s ⁻¹ et (f) 20 s ⁻¹ . À partir de 16 s ⁻¹ , des évènements perturbateurs provenant des bords supérieur et inférieur de la cellule viennent déstructurer l'écoulement. | 69 |
|------|--|----|
| 3.31 | Photographies de CPCl/NaSal 10% à 16 s ⁻¹ lors du passage d'un évènement pertubateur. (a) l'évènement arrive et perturbe l'interface. (b) l'évènement est installé dans l'entrefer sur toute la hauteur d'observation. | 70 |
| 3.32 | Réponse en contrainte de CPCl/NaSal 10% à un cisaillement de 20 s ^{-1} . Lorsque l'événement perturbateur remplit l'entrefer sur toute la hauteur de la cellule, la contrainte augmente brutalement. Chaque pic dans la réponse en contrainte correspond à un événement | 70 |
| 3.33 | Ces deux graphiques montrent l'évolution des amplitudes et longueurs d'onde des motifs mesurées sur CPCl/NaSal 8 et 10% (à 22°C) et CTAB/NaNO ₃ (à 28°C) en fonction du cisaillement ($\dot{\gamma}$) normalisé par la largeur de plateau ($\delta \dot{\gamma}$) de l'échantillon. | 71 |
| 3.34 | (a) Déstabilisation de l'interface sur CTAB(0,3 M)/KBr(0,3 M) à 34°C à $\dot{\gamma}=120$ s ⁻¹ . (b) Réponse en contrainte d'un système de copolymères triblocs (P84), figure empruntée à la référence [12]. La photographie (c) présente l'interface déstabilisée de ce système. (d) Réponse en contrainte d'un système de polymères téléchéliques à $\dot{\gamma}\tau_0=3,09$ [13].(e) Réponses en contrainte d'un système en oignons relaxant lentement vers l'état stationnaire, figure empruntée à la référence [6] | 72 |
| 3.35 | Série de couples d'images durant deux expériences pour un cisaillement de 30 s^{-1} sur CTAB(0,3 M)/NaNO ₃ (0,405 M) à 28°C. L'observation de l'entrefer est faite avec le laser pour la première expérience et en lumière blanche pour la deuxième. Sur ces images, le rotor est à gauche et le stator à droite. Le cisaillement est stoppé à t=300 s | 73 |
| 3.36 | Expérience en lumière blanche sur $CTAB(0,3 \text{ M})/NaNO_3(0,405 \text{ M})$ à 28°C pour un cisaillement de 40 s ⁻¹ . Sur ces images, le rotor est à gauche et le stator à droite. Des rouleaux se développent dans la phase fluide induite | 75 |
| 3.37 | Mesure de la vitesse de dévloppement des rouleaux. La fluctuation d'indice optique marquée par un liseret noir, sur les photographies (a,b), est reperée (marque rouge sur (a)) par mesure de l'intensité lumineuse en niveaux de gris (graphique (c) en unités arbitraires). Le déplacement des liserets suivant r et z sur la série d'images donne la distance parcourue en fonction du temps. L'évolution de cette distance au cours du temps est linéaire. La pente de la droite d'ajustement donne la vitesse de développement (ici, v_z pour le rouleau 1, graphique (d)). | 75 |
| 3.38 | Photographies de l'entrefer : (a) CTAB/KBr à 34°C pour $\dot{\gamma}=100 \text{ s}^{-1}$, (b) CPCl/NaSal 8% à 22°C pour $\dot{\gamma}=12 \text{ s}^{-1}$, (c) CPCl/NaSal 10% à 22°C pour $\dot{\gamma}=12 \text{ s}^{-1}$ et (d) CPCl/NaSal 12% à 22°C pour $\dot{\gamma}=10 \text{ s}^{-1}$. (a,b) sont obtenues par soustraction de l'image au repos de l'entrefer | 76 |
| 3.39 | Courbes d'écoulement de CTAB/NaNO ₃ à 28° C avec paillettes (\circ) et sans paillettes (\blacktriangle). | 77 |

- 3.40 (a), (b) Vue extérieure de la cellule pour observer la lumière réfléchie par les paillettes (configuration 3). (a) avant le cisaillement, la lumière réfléchie est uniforme, au gradient d'intensité lumineuse près. En effet, l'intensité lumineuse est légérement plus importante vers le haut de la cellule (à gauche des photographies (a) et (b)). (b) après 3 minutes de cisaillement à 40 s⁻¹, il y a alternance de bandes brillantes et plus sombres suivant la hauteur de la cellule (ici en abscisse).s (c) présente le profil d'intensité lumineuse observé sur (b). (d) et (e) montrent respectivement l'image de l'entrefer vue avec le laser et en lumière blanche sur une hauteur d'observation moitié plus petite que sur la vue extérieure (b). 783.41 Diagrammes spatiotemporels de CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) pour un cisaillement de 75 s⁻¹ : (a) profil de l'interface observée à l'intérieur de la cellule, (b) intensité lumineuse réfléchie par le milieu ensemencé avec des paillettes de Kalliroscope à 1,2% en masse. Les motifs correspondent et sont pris à deux positions diamétralement opposées, soulignant le caractère axisymétrique du motif. Figure 78 3.42 Diagrammes spatiotemporels de CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) ensemencé avec des paillettes de Kalliroscope. Pour cette expérience, on impose $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$. (a) Diagramme spatiotemporel du motif des paillettes pris en filmant l'extérieur de la cellule sur toute sa hauteur. (b) agrandissement sur la partie centrale de (a). (c) Diagramme spatiotemporel de l'interface dans l'entrefer à mi-hauteur de la cellule. 793.43 Évolution de la longueur d'onde de l'interface en rouge et du double de la longueur d'onde du motif des paillettes. Ces valeurs sont moyennées sur trois essais. . . . 793.44 Les temps de déstabilisation de l'interface (en rouge) et temps d'apparition du motif extérieur dû aux paillettes (en noir) sont présentés sur trois séries d'expériences pour lesquelles les évènements intérieurs (formation d'un minimum de l'interface) et extérieurs (formation d'une bande sombre dans le motif des paillettes à l'extérieur de la cellule) sont corrélés en hauteur. Les barres d'erreur sont les incertitudes sur la mesure des temps correspondant à un événement. 80 3.45 Série d'images en lumière blanche de l'entrefer à $\dot{\gamma} = 70 \text{ s}^{-1}$. La largeur de l'image correspond à celle de l'entrefer (1,13 mm). L'image au repos est soustraite de toutes les autres images pour enlever les défauts de la cellule et ne garder que les détails du motif. 81 3.46 Diagrammes spatiotemporels de l'interface pour CTAB(0,3 M)/NaNO₃(0,405 M) à 28°C. (a) $\dot{\gamma} = 60 \text{ s}^{-1}$, (b) $\dot{\gamma} = 65 \text{ s}^{-1}$, (c) $\dot{\gamma} = 70 \text{ s}^{-1}$ et (d) $\dot{\gamma} = 75 \text{ s}^{-1}$ pour une 81 3.47 A gauche : Statistique des temps de vie moyen des rouleaux en fonction du taux de cisaillement imposé. A droite : histogramme des temps de vie des rouleaux pour 82 3.48 Taux d'annihilation des paires de rouleaux en fonction du taux de cisaillement 82 3.49 Illustration de l'instabilité de Taylor. La cellule est la même que précédemment.
- 3.49 Illustration de l'instabilité de Taylor. La cellule est la même que précédemment.
 Le fluide est de l'eau pure ensemencée avec une faible concentration de particules de kalliroscope pour visualiser les rouleaux dans l'entrefer.

| 3.50 | Illustration du mécanisme de Hinch. Deux fluides non-miscibles sont placés dans une conduite circulaire. Une légère perturbation de l'interface (d'amplitude δ) est amplifiée par la force due à la différence des contraintes normales entre les deux fluides. L'instabilité de l'interface va croître et générer un écoulement secondaire. Les flèches noires représentent la force s'exerçant sur l'interface, tandis que les flèches bleues indiquent la direction de l'écoulement. Figure empruntée à la réfé- rence [114]. | 85 |
|------|--|----|
| 3.51 | Simulation numérique du champ de vitesse de l'écoulement basée sur l'équation d-JS d'après S. Fielding [109]. La norme et le sens de la vitesse sont indiqués par les flèches. Des rouleaux contra-rotatifs se développent au niveau de l'interface matérialisée en trait plein. | 85 |
| 3.52 | À gauche : Variation de la première différence des contraintes normales avec le cisaillement. À droite : Evolution de $\left(\frac{e}{R_1}\right)^{\frac{1}{2}}$ Wi avec le cisaillement, où Wi est le nombre de Weissenberg défini comme Wi = $\frac{N_1}{\sigma}$. En bleu : CTAB(0,3 M)/NaNO ₃ (0,405 M) à 28°C. En dégradé de couleurs chaudes : les différentes concentrations en CPCl/NaSal à 22°C. Les temps de mesure sont de 60 secondes par point pour CTAB, et respectivement de 15, 70, 120 et 300 secondes par point pour CPCl 6.3, 8, 10 et les 12, 14%. Les temps choisis correspondent à l'état sta- tionnaire du système pour CTAB/NaNO ₃ et les CPCl/NaSal 10, 12 et 14%. Pour les CPCl/NaSal 6.3 et 12%, le temps d'acquisition est choisi le plus proche de l'état stationnaire. | 86 |
| 4.1 | Représentation des couches de fluides adjacentes dans un écoulement entre deux plaques parallèles d'un système constitué de particules cylindriques de longueur ξ . (a) le cisaillement est constant sur une échelle de l'ordre de la longueur des particules cylindriques, (b) le cisaillement varie sur cette même échelle. Issue de la référence [30] | 90 |
| 4.2 | Simulations numériques de la contrainte σ_{xy} (S) et des contraintes normales dues aux polymères (W) lors des trois étapes définies par le modèle : (a) déstabilisation de l'échantillon, (b) reconstruction de l'interface et (c) migration de l'interface vers sa position d'équilibre. Issue de [93] | 92 |
| 4.3 | Diagrammes spatiotemporels pour deux sauts différents. (a) l'amplitude du saut de 10 à 40 s ⁻¹ est suffisante pour détruire l'interface qui va se reformer durant le second cisaillement. (b) l'amplitude du saut de 20 à 30 s ⁻¹ est insuffisante pour détruire l'interface créée lors du premier cisaillement | 94 |
| 4.4 | À gauche, nous avons tracé en bleu la réponse en contrainte et en noir la position moyenne de l'interface sur toute la durée de l'expérience. À droite, réponse en contrainte lors du saut de 10 à 40 s ⁻¹ à partir de 240 s. L'ajustement des données avec l'équation 4.19 est présenté en trait plein rouge | 95 |
| 4.5 | Réponse en contrainte de l'échantillon pour un saut de 20 à 30 s ⁻¹ . L'interface créée lors du cisaillement à 20 s ⁻¹ n'est pas détruite pendant le saut, mais migre vers le stator tout en étant déstabilisée. Durant le transitoire induit par le saut, la longueur d'onde s'adapte au niveau cisaillement imposé. Cela se traduit par l'absence d'undershoot dans la réponse à 30 s ⁻¹ , l'instabilité étant déjà installée | |
| | et développée | 96 |
96

- 4.6 Diagramme des phases du palier $(\dot{\gamma})$ en cisaillement en fonction du saut $(\Delta \dot{\gamma})$. Nous distinguons deux régions où le comportement de l'interface est différent. Dans la région 1, le saut n'est pas suffisamment grand pour détruire l'interface formée lors du palier. Pour la région 2, le saut est suffisant pour détruire l'interface. La région grisée indique la région où les deux comportements sont difficiles à différencier. En pratique, nous devons nous situer en dehors de cette région limite.

4.8 Réponse en contrainte en bleu lors du saut du repos à 30 s^{-1} à partir de 0 s. La courbe rouge est l'ajustement des données de la courbe noire avec l'équation 4.19. 97

- 4.9 Coefficient de diffusion (à gauche) et longueur de corrélation de la contrainte (à droite) en fonction du cisaillement normalisé par le temps de Maxwell de CTAB/NaNO₃ à 28 °C. Les sauts depuis le repos et ceux depuis un cisaillement semblent en assez bon accord.
 4.10 Comparaison des coefficients de diffusion obtenus avec des cellules de hauteur 2, 3
- 4.10 Comparaison des coentrents de diffusion obtenus avec des centres de nauteur 2, 3 et 4 cm. Les résultats sont similaires. La hauteur de la géométrie n'influence pas le coefficient de diffusion.
 99
- 4.11 Règle du levier pour CPCl/NaSal 8% en trait pointillé et 10% en trait plein à 22°C. La proportion de phase induite pour le 8% (o) semble suivre cette règle, tandis que pour 10% (•), la proportion est bien plus faible que celle attendue.
 100
- 4.12 Réponse en contrainte de CPCl/NaSal 8% à un cisaillement à 10 s⁻¹. L'ajustement des données (courbe noire) avec l'équation 4.19 est tracé en rouge.
 100
- 4.13 Comparaison des coefficients de diffusion (à gauche) et longueurs de corrélation de la contrainte (à droite) pour les quatre systèmes étudiés.
 4.14 Évolution du temps de migration pour les différents systèmes étudiés. Ces temps de migration sont extraits par l'ajustement d'une exponentielle avec la position de
- 5.1 Sur la figure de gauche, les différents types d'attracteurs sont représentés : (1) l'attracteur vers un point fixe, (2) l'attracteur périodique ou cycle limite marque l'oscillation du système autour d'un point fixe, (3) attracteur d'un système quasipériodique de deux fréquences propres, l'ensemble des trajectoires prennent la forme d'un tore, (4) l'attracteur étrange de Lorenz est caractérisé par le fait que l'on ne peut prédire les trajectoires du système qui ne sont jamais empruntées plus d'une fois par le système. La figure de droite représente l'attracteur étrange de Lorentz. Figures issues de http://www.umh.ac.be/fsmathematique.html. . . . 106
 5.2 Exemples de bifurcation dans le cas de l'équation de Van der Pol : (a) relaxation

| 5.3 | Deux types de bifurcations de Hopf : (a) bifurcation de Hopf super-critique, les | |
|-------|---|------------|
| | traits en pointillés correspondent à des solutions instables et les lignes à des solu- tions stables (b) bifurcation de Hopf sous critique, pour lequel un cycle d'hystérèse | |
| | est observé (représenté par les flèches). | 108 |
| 5.4 | Scénarios de transition vers le chaos, en haut, de Landau, et en bas, de Ruelle- | |
| | Takens. Figure empruntée à la référence [131] | 108 |
| 5.5 | Réponses en contrainte pour différents cisaillements de CTAT (2%) /NaCl (10 mM) | |
| | à 26.5° C. (a) 0.05 s^{-1} , (b) 0.75 s^{-1} , (c) 2 s^{-1} , (d) 5 s^{-1} , (e) 10 s^{-1} périodique, (f) | |
| | 15 s^{-1} quasi-périodique, (g) 17 s^{-1} quasi-périodique, (h) 19 s^{-1} intermittent, (i) | 110 |
| 56 | 21 s^{-1} chaotique. Issue de la reference [134] | 110 Səl |
| 5.0 | 6.3% sont : (a) à 12 s ⁻¹ périodique (b) à 15 s ⁻¹ pseudo-périodique (c) à 20 s ⁻¹ | Jai |
| | intermittente et à (d) 22 s^{-1} , (e) 25 s^{-1} chaotique | 111 |
| 5.7 | Spectre de puissance par transformée de Fourier de la contrainte à 15 s^{-1} . Trois | |
| | fréquences sont présentes dans le signal $f_0=0,\!1939$ Hz, $f_1=0,\!1689$ Hz et f_2 | |
| | $= 0,0417$ Hz, ainsi que des combinaisons linéaires de celles-ci. f_0 correspond à | |
| | la fréquence du rotor. Les fréquences de f_1 et f_2 sont intrinsèques au fluide et | 1 1 1 |
| 59 | représentent la pseudo-periodicité du signal | 111 |
| 0.0 | de plateau Sur la figure de gauche nous avons représenté trois expériences sur 30 | |
| | minutes. On distingue clairement les phases laminaires des bouffées chaotiques. | 112 |
| 5.9 | Observation optique de l'entrefer à 25 s^{-1} . L'écoulement paraît totalement désor- | |
| | donné | 113 |
| 5.10 | Spectre de puissance par transformée de Fourier de la contrainte à 25 s^{-1} . La ligne | |
| | rouge représente l'ajustement avec une exponentielle décroissante. Le caractère | |
| ۳ 1 1 | exponentiel décroissant et irrégulier du continuum est significatif du chaos | 113 |
| 5.11 | Diagrammes par la methode des retards sur le signal intermittent à 20 s ⁻¹ . La contrainte au pas N est tracée en fonction de la contrainte au pas N 1. N 25 et N | |
| | 50 La forte densité correspond au signal périodique de la phase laminaire tandis | |
| | que le nuage correspond aux bouffées chaotiques | 114 |
| 5.12 | Diagrammes par la méthode des retards sur le signal chaotique à 25 s^{-1} . La | |
| | contrainte au pas N est tracée en fonction de la contrainte au pas N-1 (à gauche) | |
| | et N-28 | 114 |
| 5.13 | $S = ln \left[\frac{d_{ij}(k)}{d_{ij}(0)} \right]$ en fonction de k, obtenue à l'aide de TISEAN [146]. La pente (en | |
| | rouge) de S représente λ_{max} . Δt , avec Δt l'intervalle entre deux points de mesure | |
| F 14 | (ici, $\Delta t = 0,06$ s). $m \in [6;10]$ et $L = 2$ | 115 |
| 5.14 | Integrale de correlation obtenue à l'aide de IISEAN [140], avec $m \in [1; 10]$. Pour les petites valeurs de R $C(R) \sim R^{\nu}$ Sur ce graphique $ln(C(R))$ est tracé en | |
| | fonction de $ln(R)$. La pente ν de $ln(C(R))$ converge pour $m = 7$ à la valeur | |
| | $\nu = 6, 6.$ Cette valeur est une estimation de la dimension de corrélation | 116 |
| | | |

Résumé

Nous étudions des solutions semi-diluées de micelles géantes en géométrie Couette présentant une transition vers un état en bandes de cisaillement au-delà d'une sollicitation seuil. La signature mécanique de cette transition se traduit par la présence d'un plateau en contrainte dans la courbe d'écoulement de ces solutions, associé à la formation de bandes supportant différents cisaillements. Nous nous sommes intéressés au comportement de l'interface entre ces bandes de cisaillement. L'étude aux temps courts est motivée par la proposition de modélisation de la courbe d'écoulement de ces solutions par le modèle diffusif Johnson-Segalman. Dans ce modèle, le terme de diffusion de la contrainte viscoélastique est relié à la migration de l'interface, que nous estimons expérimentalement. Aux temps longs, nous avons observé la déstabilisation de l'interface entre ces bandes de cisaillement, dans le plan d'observation vorticitéDgradient de vitesse, pour plusieurs solutions. La réponse mécanico-optique est similaire pour des solutions composées de différents tensioactifs. D'autre part, nous avons montré que la déstabilisation de l'interface est associée à la formation d'un écoulement secondaire sous la forme de cellules de convection empilées suivant la vorticité. Le scénario de base, supposant un écoulement unidirectionnel, est remis en cause par l'observation directe d'un écoulement tri-dimensionnel. L'ensemble de ces résultats suggèrent le développement de la même instabilité dans différentes solutions et nous ont amenés à envisager deux mécanismes de type « élastique » pouvant être à l'origine de l'instabilité : un mécanisme interfacial et un mécanisme en volume.

Mots-clés : bandes de cisaillement, micelles géantes, instabilité élastique, tensioactifs, fluides complexes, contraintes viscoélastiques, transition vers le chaos, écoulement tri-dimensionnel.

Summary

We study semi-dilute solutions of wormlike micelles in Couette geometry presenting a transition to a shear banding state beyond a shear stress threshold. The mechanical signature of this transition is reflected by the presence of a stress plateau in the flow curve of these solutions, associated with the formation of bands supporting different shear stress. We are interested in the behavior of the interface between shear bands. The study at early times is motivated by the proposed modeling of the flow curve of such solutions by the diffusive model Johnson-Segalman. In this model, the diffusion term of the viscoelastic stress is related to the migration of the interface between shear bands in the observation plan vorticity-velocity gradient for multiple solutions. The mechanical-optical response is similar to solutions composed of different surfactants. On the other hand, we have shown a destabilization of a secondary flow, in the form of convection cells stacked along the vorticity. The basic scenario, assuming a unidirectional flow, is challenged by direct observation of a three-dimensional flow. Taken together, these results suggest the development of the same instability in different solutions and have led us to consider two "elastic" mechanisms that may be the cause of the interface's instability : a interfacial mechanism.

Keywords : shearbanding transition, giant wormlike micelles, surfactants, complex fluids, elastic instability, 3D flow, transition to chaos.