



**HAL**  
open science

## Quand solides et liquides s'imitent

Serge Mora

► **To cite this version:**

Serge Mora. Quand solides et liquides s'imitent. Physique Générale [physics.gen-ph]. Université montpellier II, 2011. tel-01259683

**HAL Id: tel-01259683**

**<https://hal.science/tel-01259683>**

Submitted on 20 Jan 2016

**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.

UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER 2

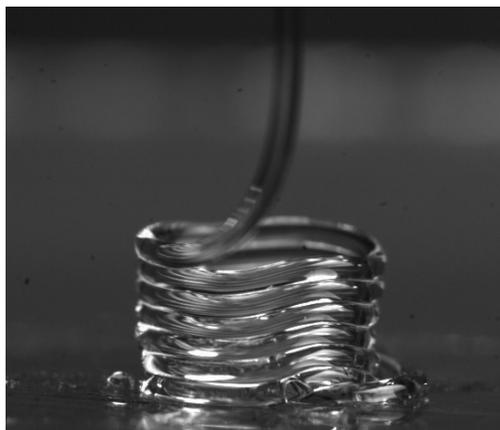
MÉMOIRE D'HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

---

## Quand solides et liquides s'imitent

---

Serge MORA



**Habilitation soutenue le 8 décembre 2011 devant un jury composé de :**

<b>M. Christian Ligoure</b>	
<b>M. Laurent Limat</b>	rapporteur
<b>M. Sébastien Manneville</b>	rapporteur
<b>M. Yves Pomeau</b>	Président du jury
<b>M. Farhang Radjai</b>	rapporteur
<b>M. Elie Raphaël</b>	



Photo en couverture : *enroulement spontané d'un filament de fluide viscoélastique tombant sur un support plan.*

*Un phénomène analogue se produit avec un filet de fluide visqueux (flambage visqueux) et avec une corde (flambage élastique). Les fluides viscoélastiques permettent de faire le lien entre ces deux types d'enroulement. La largeur réelle de la photo est de 2 cm.*

## Remerciements

Ce mémoire présente une partie des travaux de recherche que j'ai effectués au sein du Laboratoire Charles Coulomb, une unité mixte CNRS-Université de Montpellier II.

Je tiens à remercier les personnes avec lesquelles j'ai le plus travaillé : Yves Pomeau, Grégoire Porte, Christian Ligoure et Miguel Manna. Les chapitres qui suivent leur doivent beaucoup.

- Faire de la Science avec Yves est pour moi un immense plaisir. Mille fois merci !
- Grégoire m'a remarquablement accueilli au laboratoire en m'offrant la possibilité d'être autonome et libre dans mes activités de recherche et en soutenant mes projets. Grâce à lui et avec lui, j'ai pu développer les thèmes qui me paraissaient les plus prometteurs. Je lui exprime ma profonde gratitude, et un grand respect.
- Je remercie Christian pour son soutien, et sa confiance qui me touche beaucoup. Il a participé à créer une dynamique autour des axes de recherche que nous partageons. Son implication dans le réseau d'excellence SoftComp, le projet TSANET (ANR), les discussions spontanées que nous avons eues, son écoute, et sa volonté d'aller toujours plus loin m'ont été des plus profitables.
- Je suis fier du travail réalisé avec Miguel. Notre collaboration est des plus agréables. Miguel m'a montré sa grande ouverture d'esprit en s'intéressant à des problèmes qui étaient un peu éloignés de ses précédents thèmes. Merci, Miguel, pour ta gentillesse, ta patience, et ta bonne humeur.
- Merci à Ty Phou et à Jean-Marc Fromental pour leur importante contribution dans la réalisation des expériences. Sans eux, leur créativité et leur dynamisme, le manuscrit aurait été plus fin, et surtout, les perspectives nettement plus lointaines.

Merci à Julian Oberdisse, Laurence Ramos, Luca Cipelletti, Mattéo Ciccotti, Manouk Abkarian, Hervé Tabuteau, Elisabeth Bouchaud, Olivier Dauchot, et toutes les autres personnes qui m'ont aidé dans mon travail.

Je remercie Laurent Limat, Sébastien Manneville et Farhang Radjai d'avoir accepté d'être rapporteurs, ainsi que les membres du jury, Christian Ligoure, Yves Pomeau et Elie Raphaël pour leur réflexions, leurs questions et l'intérêt porté à mes travaux.



# Table des matières

<b>Avant propos</b>	<b>iii</b>
<b>Avant propos</b>	<b>vii</b>
<b>1 Comportements fluide et élastique</b>	<b>1</b>
1.1 Equations constitutives . . . . .	1
1.2 Quelques réalisations expérimentales . . . . .	4
Bibliographie . . . . .	8
<b>2 Instabilité de Saffman-Taylor et viscoélasticité</b>	<b>11</b>
2.1 Introduction . . . . .	11
2.2 Position du problème . . . . .	12
2.3 Théorie . . . . .	14
2.4 Résultats expérimentaux . . . . .	22
2.5 Conclusion et Perspectives . . . . .	26
Bibliographie . . . . .	27
<b>3 Instabilité de Rayleigh-Plateau élastique</b>	<b>29</b>
3.1 Introduction . . . . .	29
3.2 Approche théorique . . . . .	30
3.3 Expériences . . . . .	34
3.4 Conclusions et perspectives . . . . .	36
Bibliographie . . . . .	37
<b>4 Instabilité à la surface de solides homogènes déformés</b>	<b>39</b>
4.1 Instabilité de Biot . . . . .	39
4.2 Mises en évidence expérimentales . . . . .	41
4.3 Régularisation de l'instabilité de Biot . . . . .	44
4.4 Conclusion et perspectives . . . . .	49
Bibliographie . . . . .	49
<b>5 Des formes adoucies</b>	<b>53</b>
5.1 Introduction . . . . .	53
5.2 Lemme : contraction capillaire . . . . .	54
5.3 Déformations d'angles très aigus . . . . .	56
5.4 Lemme : filtre passe-bas capillaire . . . . .	58
5.5 Déformation de coins d'angle proche de $\pi$ . . . . .	59
5.6 Perspectives . . . . .	60

<b>6</b>	<b>Fractures fragiles de fluides viscoélastiques</b>	<b>63</b>
6.1	Mise en évidence . . . . .	63
6.2	Nucléation . . . . .	66
6.3	Propagation . . . . .	68
6.4	Conclusions et perspectives . . . . .	71
	Bibliographie . . . . .	72
<b>7</b>	<b>Approche cinétique de la fracture de réseaux transitoires</b>	<b>75</b>
7.1	Introduction . . . . .	75
7.2	Modèle unidimensionnel . . . . .	76
7.3	Réseau transitoire bidimensionnel sous élongation . . . . .	81
7.4	Discussion . . . . .	83
7.5	Conclusions et perspectives . . . . .	85
	Bibliographie . . . . .	86
<b>8</b>	<b>Conclusions et perspectives générales</b>	<b>89</b>
8.1	Projets portant sur les solides mous . . . . .	89
8.2	Projets portant sur les fractures de matériaux mous . . . . .	90
	Bibliographie . . . . .	92
<b>A</b>	<b>CV</b>	<b>95</b>
<b>B</b>	<b>Encadrement</b>	<b>97</b>
<b>C</b>	<b>Publications</b>	<b>99</b>

# Avant propos

Tout en répondant de façons bien différentes à une contrainte, solides et liquides sont déformables. La théorie de l'élasticité d'une part, et celle de l'hydrodynamique d'autre part, ont permis d'expliquer et de prédire un nombre impressionnant de phénomènes physiques. Néanmoins de nombreux problèmes restent ouverts dans ces deux domaines de la mécanique des milieux continus, problèmes auxquels sont probablement associées des découvertes futures dont l'impact sera important, tant sur le plan des connaissances que sur celui des applications et de la technique. Citons la physique de la morphogénèse (avec des applications évidentes dans le domaine de la biologie) ; la physique à l'échelle de la cellule ; la conception, la fabrication et l'utilisation d'objets micro et nanométriques ; le contrôle de micro et nano écoulements et les problèmes de mélange à petite échelle ; la conception de matériaux nouveaux, et les problèmes de vieillissement et de fractures qui y sont associés, etc.

Le travail présenté dans ce manuscrit explore la piste suivante : dans quelle mesure nos connaissances sur des phénomènes d'origine hydrodynamique peuvent-elle apporter des idées neuves dans le champ de l'élasticité ? Et réciproquement, quels peuvent être les apports, pour l'hydrodynamique, de nos connaissances en élasticité ?

Les systèmes physiques bien adaptés pour cette approche sont :

- les fluides viscoélastiques. Ces matériaux se comportent comme des solides élastiques lorsqu'ils sont sollicités sur des temps courts, et comme des fluides dans le cas contraire. Imaginons une expérience où il est possible de contrôler le temps caractéristique associé à un phénomène qui se produit sur des solides élastiques. Ce phénomène peut être mis en évidence avec un fluide viscoélastique, pourvu que le temps caractéristique du phénomène étudié soit dans le domaine où il se comporte comme un solide. Supposons maintenant que l'opérateur s'arrange pour que le phénomène se produise sur des durées de plus en plus longues. Le fluide viscoélastique passe alors continûment d'un comportement élastique à un comportement visqueux. Il est alors possible d'observer les conditions qui font que le phénomène reste - ou disparaît - lors du passage du monde élastique vers le monde visqueux.
- les solides très déformables et/ou mous. Il existe des solides, comme certains gels ou certains élastomères, capables d'encaisser de très grandes déformations sans rompre, ou/et capables de se déformer sous de très petites contraintes. Ces solides se rapprochent - par certains aspects certes bien minces - d'un liquide qui, lui, est infiniment déformable et se déforme sous l'effet d'une contrainte infiniment faible (à condition de lui laisser le temps). Ces solides permettent de révéler des phénomènes qui se manifestent communément avec des liquides, mais qui étaient invisibles, du moins à première vue, sur des solides.

Ce mémoire se divise en sept parties :

- après une brève introduction sur les spécificités mécaniques des fluides, des solides et des fluides viscoélastiques de Maxwell, je présenterai les matériaux utilisés dans cette étude ;
- la deuxième partie porte sur l'étude de l'instabilité de Saffman-Taylor pour les fluides viscoélastiques (Section 2). Comment les effets élastiques se manifestent-ils vis-à-vis de l'instabilité de Saffman-

- Taylor, instabilité bien connue en hydrodynamique ? Le système expérimental utilisé dans cette partie est un fluide viscoélastique ;
- la troisième partie concerne l'étude de l'instabilité de Rayleigh-Plateau pour un objet élastique (Section 3). Que devient cette instabilité si, au lieu d'être liquide, le matériau est solide ? Le système expérimental utilisé est un gel très mou ;
  - la section 4 porte sur l'étude de l'instabilité de Biot. Cette instabilité se manifeste à la surface d'un solide élastique déformé. Elle est encore peu connue et mal maîtrisée. Nous l'avons étudiée par le biais d'un fluide viscoélastique ;
  - une goutte libre de liquide en apesanteur est sphérique. Une goutte déposée sur une surface prend une forme bien connue. Qu'en est-il pour un solide élastique ? Un cube découpé dans un matériau élastique reste-il bien cubique, même s'il est très mou ? Ce problème est traité à la section 5 ;
  - des fractures peuvent apparaître dans des fluides viscoélastiques : se comportant comme des solides aux temps courts, ce phénomène n'est pas étonnant. Mais la nature fluide de ces matériaux apporte des spécificités dans le processus de fracturation, comme la possibilité d'auto-cicatriser, ou encore de subir de grandes déformations avant de casser. Des expériences sont introduites à la section 6 puis interprétées. Un modèle microscopique de la fracture de réseau transitoire est présenté à la section 7 ;
  - enfin, ce document se termine par une conclusion générale et la présentation de travaux à venir.

# Chapitre 1

## Comportements fluide et élastique

Fluides, solides amorphes et solides cristallins sont déformables. Les fluides sont infiniment déformables alors que les solides ne le sont que dans une certaine limite, au delà de laquelle ils rompent.

Leur comportement mécanique est décrit par une loi constitutive qui relie la déformation à la contrainte. Cette loi est plus ou moins compliquée d'un matériau à l'autre. Par exemple, pour un solide ductile, elle est non-linéaire et fait intervenir des dérivées temporelles de la déformation (vitesse de déformation, etc.).

Nous ne considérons que des matériaux incompressibles. L'énergie associée à la déformation d'un corps se décompose en une partie surfacique provenant des variations de surface au cours de la déformation, et une partie volumique. Pour un liquide purement visqueux, cette dernière est instantanément dissipée. Pour un solide élastique, l'énergie volumique est conservée et dépend uniquement de la déformation. Ainsi, lorsqu'une sollicitation cesse, il recouvre sa forme initiale. Certains matériaux, comme les fluides viscoélastiques, ont un comportement intermédiaire entre liquide purement visqueux et solide élastique.

L'objectif de ce chapitre est de donner des précisions sur ces différents comportements et de présenter les réalisations expérimentales qui serviront de support aux travaux présentés dans ce document.

### 1.1 Equations constitutives

#### 1.1.1 Liquides purement visqueux

Définissons un liquide purement visqueux comme un matériau perdant à tout instant la mémoire des déformations antérieures : la contrainte en un point du liquide ne doit pas dépendre des dérivées temporelles de la vitesse. Elle ne peut dépendre de la vitesse que par ses dérivées spatiales, sous peine d'obtenir une équation constitutive dépendant du référentiel [1]. Pour la même raison, elle ne peut dépendre du gradient de vitesse  $\nabla\mathbf{v}$  qu'au travers de quantités invariantes par changement de référentiel [2]. Suivant l'hypothèse faite par Stokes en 1845, nous supposons que la contrainte ne dépend que du tenseur des taux de déformation défini par :

$$\hat{D} = \frac{1}{2} (\nabla\mathbf{v} + \nabla\mathbf{v}^T). \quad (1.1)$$

L'équation constitutive la plus générale pour un fluide incompressible est alors [2] :

$$\hat{\tau} = \Phi_1(II_D, III_D)\hat{D} + \Phi_2(II_D, III_D)\hat{D}^2, \quad (1.2)$$

où  $\hat{\tau}$  est le tenseur des contraintes,  $\Phi_1$  et  $\Phi_2$  sont deux fonctions devant vérifier certaines conditions pour que l'énergie dissipée soit positive, et  $II_D$  et  $III_D$  sont les deuxième et troisième invariants du tenseur  $\hat{D}$  :  $II_D = \frac{1}{2} (tr^2(\hat{D}) - tr(\hat{D}^2))$  et  $III_D = det(\hat{D})$ . Le premier invariant est nul en raison de l'incompressibilité ( $div(\mathbf{v}) = 0$ ). Dans le cas d'un fluide newtonien,  $\Phi_2 = 0$  et  $\Phi_1 = 2\eta$  où  $\eta$  est la viscosité du fluide.

Les fluides pour lesquels  $\Phi_2 = 0$  et  $\Phi_1$  ne dépend que de  $II_D$  sont les fluides newtoniens généralisés. Un fluide newtonien généralisé peut être rhéofluidifiant (viscosité diminuant avec le taux de déformation sous cisaillement) ou rhéoépaississant (viscosité augmentant avec le taux de déformation), mais il existe des fluides rhéofluidifiants ou rhéoépaississants qui ne sont pas des fluides purement visqueux (par exemple des fluides gardant mémoire d'une partie des déformations antérieures).

### 1.1.2 Solides élastiques

Repérons un point d'un corps non déformé par son rayon vecteur  $\mathbf{r}$  de coordonnées cartésiennes  $(x, y, z)$ . Lorsque le corps est déformé, ce point s'est déplacé. On note  $\mathbf{R}$  (coord.  $(X, Y, Z)$ ) son nouveau rayon vecteur (Fig. 1.1).

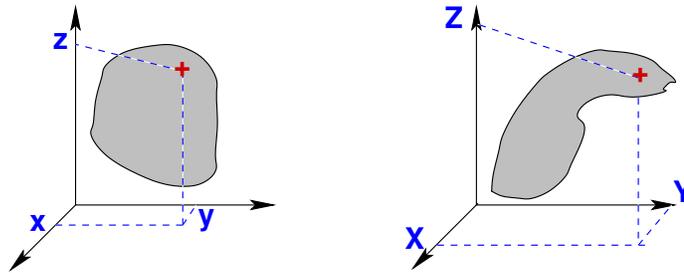


FIGURE 1.1 – Déformation quelconque d'un corps quelconque.

Notons  $\hat{F} = \nabla \mathbf{R}$  le tenseur des gradients de déformation. Ce tenseur permet de relier les distances entre deux points, avant et après déformation. En effet,

$$dR^2 = d\mathbf{r}^T \hat{F}^T \hat{F} d\mathbf{r} \text{ et } dr^2 = d\mathbf{R}^T \hat{F} \hat{F}^T d\mathbf{R}.$$

$\hat{C} \equiv \hat{F}^T \hat{F}$  est le tenseur des déformations de Green (Right Cauchy-Green deformation tensor), et  $\hat{B} \equiv \hat{F} \hat{F}^T$  est le tenseur des déformations de Finger (Left Cauchy-Green deformation tensor).

La densité volumique d'énergie élastique  $\mathcal{W}$  d'un matériau élastique ne dépend que des changements de distance lors d'une déformation, donc des tenseurs  $\hat{B}$  ou  $\hat{C}$ . Cette énergie ne peut être fonction que de grandeurs invariantes par changement de référentiel. Soient  $I_1, II_2$  et  $III_3$ <sup>1</sup> trois invariants indépendants de  $\hat{B}$  ou  $\hat{C}$  (ces deux tenseurs ont les mêmes invariants). Pour un matériau incompressible,  $III_3 = 1$ . L'équation constitutive d'un solide élastique découle de l'expression de  $\mathcal{W}$  en fonction de  $I_1$  et  $II_2$ . Différentes formes ont été proposées.

Par exemple,  $\mathcal{W} = \frac{\mu}{2}(I_1 - 3)$  pour le solide néo-hookéen,  $\mathcal{W} = \frac{\mu}{2}(I_1 - 3) + C(I_2 - 3)$  pour le solide de Mooney-Rivlin,  $\mathcal{W} = \sum_{i,j} C_{ij}(I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j$  pour les solides hyperélastiques polynômiaux, etc.

L'intérêt de ces modèles est qu'ils sont physiquement acceptables pour n'importe quel type de déformations, y compris des déformations d'amplitudes finies. Pour des déformations infiniment petites, ils convergent vers le modèle du solide hookéen avec le module de cisaillement  $\mu$  ( $\mu$  s'exprime à partir des coefficients  $C_{ij}$  dans le cas polynômial). Ils conduisent à des équations constitutives non linéaires.

Rivlin a montré il y a plus de 50 ans que le modèle de Mooney-Rivlin est équivalent au matériau incompressible le plus général de l'élasticité faiblement non linéaire au troisième ordre. Ce modèle a été développé

1. Nous choisissons comme invariants :  $I_1 = tr(\cdot)$ ,  $II_2 = \frac{1}{2}(tr^2(\cdot) - tr(\cdot^2))$  et  $III_3 = det(\cdot)$ .

pour le caoutchouc, à partir de considérations de physique statistique. Il est communément utilisé pour modéliser les tissus biologiques.

Le solide néo-hookéen est le modèle le plus simple en élasticité finie. Le seul paramètre est le module élastique. Il constitue une alternative au modèle du solide de Hooke incompressible lorsque des déformations le rendent non applicable, et permet ainsi de faire émerger des comportements nouveaux, comportements pouvant ensuite être affinés en utilisant des modèles plus sophistiqués. Solide néo-hookéen et solide de Monney-Rivlin coïncident pour des déformations bidimensionnelles (comme le cisaillement simple). Notons que la densité d'énergie élastique d'un solide néo-hookéen est une fonction quadratique des composantes du tenseur des gradients de déformation.

L'équation constitutive d'un solide néo-hookéen, issue de l'expression de la densité volumique d'énergie correspondante, est [3] :

$$\hat{\tau} = \mu \hat{B}. \quad (1.3)$$

Dans cette expression,  $\hat{\tau}$  est le tenseur des contraintes de Cauchy, donnant la force par unité de surface après déformation.

### 1.1.3 Fluides viscoélastiques de Maxwell

Un fluide viscoélastique de Maxwell se comporte aux temps courts comme un solide élastique, et aux temps longs comme un fluide visqueux. L'énergie de déformation est dissipée progressivement au cours du temps. Soit  $\lambda$  le temps de relaxation du fluide. La déformation du fluide à l'instant  $t'$  contribue à la contrainte mesurée à l'instant  $t$  ( $t > t'$ ). Cette contribution est d'autant plus atténuée que le temps qui s'est écoulé entre les instants  $t$  et  $t'$  est grand. Il est supposé, dans le modèle de Maxwell du fluide viscoélastique, que cette contribution est pondérée par  $\exp -\frac{t-t'}{\lambda}$ . Supposons que la réponse du fluide à une déformation instantanée suive le modèle néo-hookéen, i.e.,  $\hat{\tau} = \mu \hat{B}$ . Alors, la relation liant la contrainte à l'instant  $t$  aux déformations aux instants antérieurs  $t'$  est :

$$\hat{\tau}(t) = \mu \int_{-\infty}^t \frac{1}{\lambda} e^{-\frac{t-t'}{\lambda}} \hat{B}(t; t') dt', \quad (1.4)$$

où  $\hat{B}(t; t')$  est le tenseur des déformations de Finger pour la déformation du fluide correspondant aux déplacements réalisés entre les instants  $t'$  et  $t$ .

Dans le but d'obtenir une relation différentielle entre la déformation et la contrainte, dérivons l'équation (1.4). Afin de suivre le matériau dans son mouvement, la dérivation se fait au sens de Lagrange :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\tau}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \hat{\tau} &= \frac{\mu}{\lambda} \overbrace{\hat{B}(t, t)}^{=\hat{\mathcal{I}}} - \frac{1}{\lambda} \frac{\mu}{\lambda} \overbrace{\int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\lambda}} \hat{B}(t; t') dt'}^{=\hat{\tau}} + \mu \int_{-\infty}^t \frac{1}{\lambda} e^{-\frac{t-t'}{\lambda}} \frac{\partial \hat{B}(t; t')}{\partial t} dt' \\ &= \frac{\mu}{\lambda} \hat{\mathcal{I}} - \frac{\hat{\tau}}{\lambda} + \mu \int_{-\infty}^t \frac{1}{\lambda} e^{-\frac{t-t'}{\lambda}} \frac{\partial F(t; t') F^T(t; t')}{\partial t} dt' \\ &= \frac{\mu}{\lambda} \hat{\mathcal{I}} - \frac{\hat{\tau}}{\lambda} + (\hat{\tau} \cdot \nabla \vec{v}^T + \nabla \vec{v} \cdot \hat{\tau}), \end{aligned}$$

où  $\hat{\mathcal{I}}$  est le tenseur identité. Le terme isotrope est constant et contribue à la pression [3]. Nous obtenons ainsi l'équation constitutive du fluide de Maxwell convecté supérieur :

$$\frac{\partial \hat{\sigma}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \hat{\sigma} - (\vec{\nabla} \vec{v}) \cdot \hat{\sigma} - \hat{\sigma} \cdot (\vec{\nabla} \vec{v})^T + \frac{\hat{\sigma}}{\lambda} = \mu \overbrace{(\nabla \vec{v} + (\nabla \vec{v})^T)}{=2\hat{D}}. \quad (1.5)$$

Par construction, ce modèle conduit au solide néo-hookéen pour des déformations se produisant sur des échelles de temps très inférieures à  $\lambda$ . Sous cisaillement permanent :

$$\begin{cases} X = x + \dot{b}ty \\ Y = y \\ Z = z \end{cases}$$

où  $\dot{b}$  est le taux de cisaillement, l'équation constitutive (1.5) conduit à  $\tau_{xy} = \mu\lambda\dot{b}$ ,  $\tau_{xx} = 2\mu\lambda^2\dot{b}^2$ , toutes les autres composantes du tenseur des contraintes étant nulles (voir la figure 1.8 pour une illustration). La composante de cisaillement  $\tau_{xy}$  est donc identique à celle que l'on obtiendrait pour un fluide newtonien de viscosité  $\eta = \mu\lambda$ , ce qui définit la viscosité du fluide de Maxwell. La différence de contraintes normales ( $\tau_{xx} - \tau_{yy}$ ) est inférieure à  $\tau_{xy}$  lorsque  $\dot{b}\lambda < 1$ . Elle est nulle pour un fluide newtonien. Nous en concluons que les effets élastiques deviennent importants - sous cisaillement permanent - lorsque le taux de cisaillement est de l'ordre de grandeur de  $1/\lambda$  (ou supérieur). Le comportement de ce fluide s'identifie à celui du fluide newtonien aux faibles taux de cisaillement ( $\dot{b} \ll 1/\lambda$ ).

D'autres équations constitutives peuvent être construites en partant d'une équation constitutive élastique différente du solide néo-hookéen. Certaines conduisent - sous cisaillement permanent - à une dépendance non linéaire de  $\tau_{xy}$  avec  $\dot{b}$  : ces fluides peuvent être rhéofluidifiants ou rhéoépaississants, contrairement au fluide de Maxwell convecté supérieur.

## 1.2 Quelques réalisations expérimentales

### 1.2.1 Solides élastiques de faibles modules de cisaillement

Les solides pouvant subir de fortes déformations sont essentiellement les élastomères et les gels permanents. Un élastomère est un système réticulé de polymères, la réticulation étant permanente. Il supporte de très grandes déformations réversibles avant rupture aux températures supérieures à sa température de transition vitreuse. La réticulation confère au matériau une structure tridimensionnelle. Loin au dessus du seuil de percolation, le module de cisaillement est égal, en première approximation, à  $k_B T / \xi^3$ , où  $\xi$  est la distance moyenne entre deux points de réticulation,  $k_B$  est la constante de Boltzmann, et  $T$  est la température. Plus cette distance est grande, plus le matériau est mou (module faible). Il n'est cependant pas possible d'obtenir un module de cisaillement arbitrairement faible en raison de la présence d'un seuil de percolation à la proximité duquel les propriétés mécaniques sont modifiées. Afin d'obtenir de plus faibles modules de cisaillement, une manière d'espacer les points de réticulation est de gonfler le réseau élastique avec un solvant. Le matériau est alors un gel. Les gels d'agar ont été utilisés dans une partie des travaux présentés dans ce document.

L'agar (appelé E406 dans la liste des additifs alimentaires) est un gélifiant obtenu à partir d'algues rouges. On l'appelle agarose une fois purifié. Il s'agit d'un polymère de galactose. L'agarose est facilement soluble dans l'eau chaude (température supérieure à  $88^\circ C$ ). En refroidissant, lorsque la température descend en dessous de  $35^\circ C$ , les molécules s'entremêlent pour former des structures en doubles hélices [4, 5]. Ces hélices appariées peuvent s'organiser en structure plus grandes formant ainsi un réseau gorgé d'eau (Figs. 1.2 et 1.3). Les gels d'agar ne requièrent pas la présence de réticulant. Le gel prend progressivement lors du refroidissement. Une mesure du module de cisaillement montre que ce dernier augmente d'abord rapidement, puis se stabilise (Figure 1.4, à gauche). Ce matériau se comporte alors comme un solide élastique incompressible sur une large gamme de fréquences (Fig. 1.4, à droite). Le module élastique dépend de la concentration d'agarose en solution. Le domaine élastique correspond à des déformations inférieures à 10-15%. Les déformations plus grandes sont irréversibles : une partie du solvant est alors éjectée hors du gel.

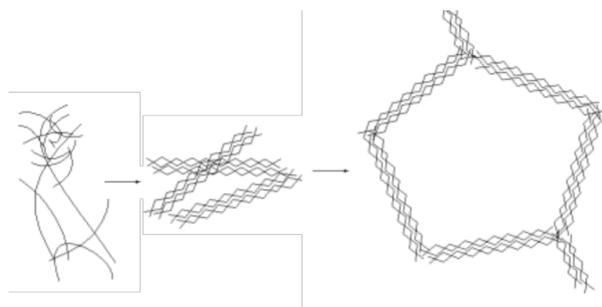


FIGURE 1.2 – Etapes de la formation d’un réseau d’agarose lorsque la température d’une solution eau/agarose descend en dessous de 35°C. Les polymères s’assemblent pour former des doubles hélices, qui s’organisent ensuite en réseau.

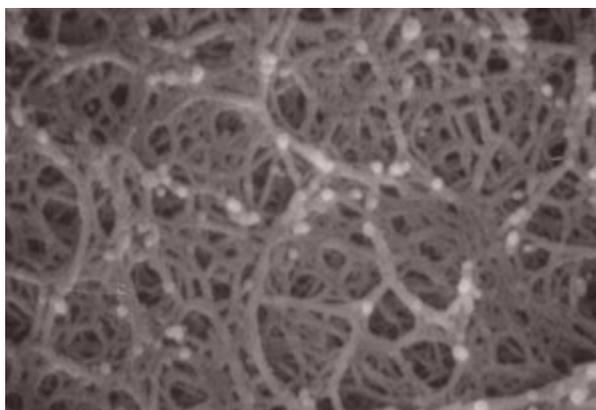


FIGURE 1.3 – Photographie par microscopie électronique d’un échantillon de gel d’agar à 1% (en masse).

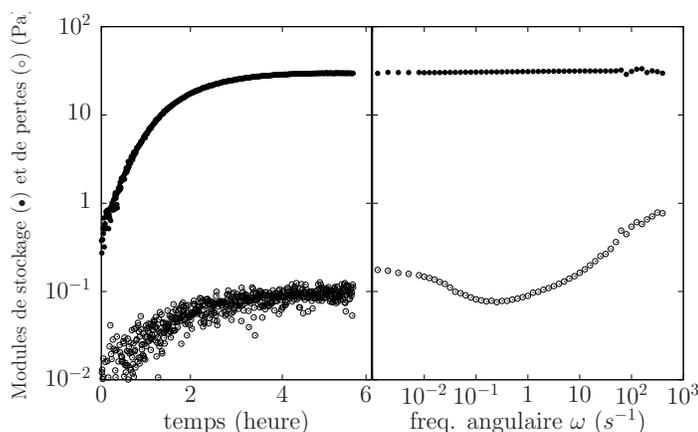


FIGURE 1.4 – Propriétés rhéologiques d’un gel d’agar (concentration massique en agar = 0,18% ; température = 20 degrés). Ces mesures sont réalisées en géométrie de Couette. A droite : évolution du module de cisaillement en fonction du temps, juste après refroidissement. Ce module est mesuré en imposant une déformation périodique (3 Hz) dans le régime linéaire (amplitude du cisaillement = 3 %). A gauche : modules de stockage et de pertes en fonction de la fréquence angulaire, 5 heures après refroidissement. Le module de stockage étant beaucoup plus grand que le module de pertes, on en déduit que ce système se comporte bien comme un solide élastique sur une large gamme de fréquences.

### 1.2.2 Fluides viscoélastiques modèles

La plupart des fluides complexes sont viscoélastiques, mais très peu sont décrits par le modèle du fluide de Maxwell. Les fondus de polymères sont bien des fluides viscoélastiques, mais leur spectre des temps de relaxation est très large (voir par exemple la figure 2.12 de la section 2), et ils sont en plus rhéofluidifiants [6].

Parmi les réalisations expérimentales de fluides de Maxwell, les solutions de micelles géantes et les systèmes constitués de polymères téléchéliques sont les plus connus. Ces systèmes ont en commun d’être auto-organisés.

Les solutions de micelles géantes [7, 8, 9, 10] sont constituées de longues micelles cylindriques résultant de l’assemblage de molécules tensioactives. Le diamètre d’un cylindre est de quelques nanomètres

alors que la longueur peut atteindre plusieurs microns. Ces micelles peuvent se couper et se recombinaison dans le temps. Leur longueur est fixée par un équilibre thermodynamique. Les propriétés rhéologiques du système dépendent essentiellement de la longueur des micelles, de leur concentration, de la cinétique de coupures/recombinaisons, et de la température. Dans le régime semi-dilué, le modèle de reptation des polymères et les propriétés de coupures et recombinaisons conduisent, pour de petites déformations, au modèle du fluide de Maxwell [11]. La figure 1.5 présente des propriétés rhéologiques, linéaires et non-linéaires, d'une solution semi-diluée de micelles géantes : si ce matériau se comporte effectivement comme un fluide de Maxwell pour de petites déformations (les modules de stockage et de pertes suivent bien les prédictions du modèle de Maxwell et la contrainte de cisaillement est bien proportionnelle au taux de cisaillement lorsque celui-ci est faible), son comportement devient singulier lorsque le taux de cisaillement s'approche de  $1/\lambda$  (où  $\lambda$  est le temps de relaxation linéaire du fluide). Or les effets élastiques sous écoulement permanent interviennent précisément dans ce domaine de taux de cisaillement : les solutions de micelles géantes ne sont correctement décrites par le modèle de Maxwell que pour de petites déformations (ou de petits taux de cisaillement). Ce système n'est donc pas adapté à l'étude des effets élastiques associés à de grandes déformations.

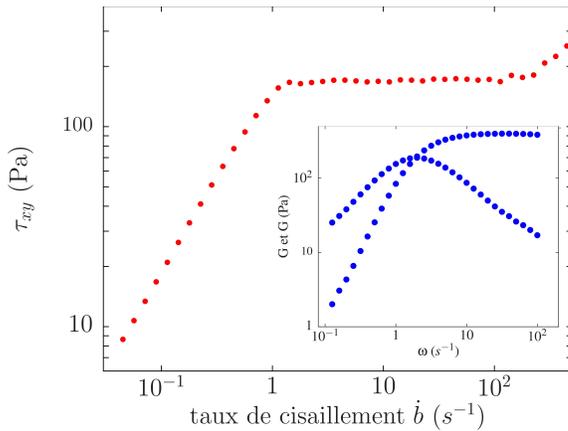


FIGURE 1.5 – Courbe d'écoulement d'une solution semi-diluée de micelles géantes formées de chlorure de céthypyridinium et de salicylate de sodium dans de l'eau salée (0,2 mol/L de NaCl), le rapport des concentrations molaires entre les tensioactifs est de 2, la fraction volumique des tensioactifs est de 10%. Le plateau correspond au passage d'une structure anisotrope (faibles taux de cisaillement) à une structure alignée (forts taux de cisaillement) [7, 12, 13]. En encart : modules de pertes et de stockage, conformes au modèle de Maxwell (temps de relaxation  $\lambda = 0,7$  s, module de cisaillement  $\mu = 460$  Pa).

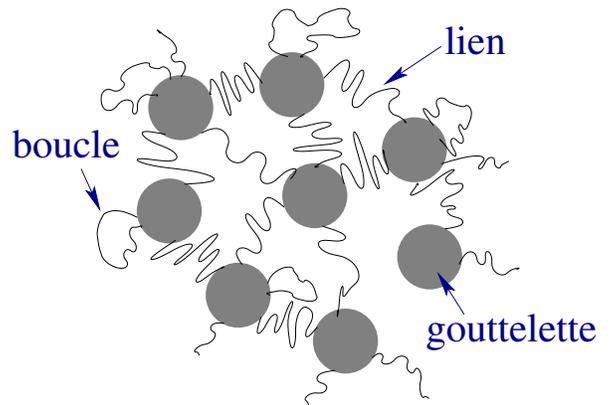


FIGURE 1.6 – Représentation schématique d'une microémulsion connectée par des polymères téléchéliques. Les gouttelettes d'huile forment les nœuds d'un réseau. Les polymères peuvent soit ponter deux nœuds (lien actif), soit former une boucle.

Des systèmes composés de polymères téléchéliques constituent une alternative intéressante. Un polymère téléchélique est un polymère tribloc dont les extrémités ont tendance à s'assembler. Lorsque la partie centrale est hydrophile et les extrémités sont hydrophobes, et que ces polymères sont placés en milieu aqueux, les parties hydrophobes s'auto-assemblent pour former des micelles [14, 15, 16, 17]. Si les extrémités d'une même chaîne de polymère se trouvent dans des micelles différentes, la chaîne forme un lien. Lorsque la concentration est suffisamment grande, il se forme ainsi un réseau élastique de micelles connectées par des chaînes. Le temps de résidence d'une extrémité dans une micelle étant fini, la topologie du réseau évolue dans le temps, ce qui lui permet de s'écouler.

Nous avons utilisé dans nos travaux un système permettant de contrôler séparément la taille des nœuds,

leur nombre, et la connectivité du réseau [18, 19, 20]. Ce système est obtenu à partir d'une microémulsion de gouttelettes d'huile (décane) dans de l'eau salée (0,2 mol/L de NaCl). Ces gouttelettes sphériques sont stabilisées par un mélange de molécules tensioactives (chlorure de céthypyridinium et octanol). Leur rayon ( $\approx 62 \text{ \AA}$  dans la suite) est contrôlé par les concentrations relatives des tensactifs. La fraction volumique hydrophobe de cette microémulsion, notée  $\phi$ , est fixée par la concentration d'huile et de tensioactifs. Lorsque des polymères téléchéliques (polyoxyéthylène de masse molaire 10 ou 35 kg/mole, avec des groupements alkyles comportant 12, 18 ou 23 atomes de carbone greffés aux extrémités) sont mélangés à la microémulsion, ces derniers créent soit des boucles, soit des liens entre gouttelettes (Fig. 1.6). L'énergie d'adhésion d'une extrémité hydrophobe dans une gouttelette étant de l'ordre de grandeur des fluctuations thermiques d'énergie,  $k_B T$ , ces liens ne sont pas permanents. D'un point de vue topologique, ce système est constitué de liens élastiques, de boucles, et de nœuds. Un réseau élastique infini se forme lorsque la connectivité du réseau, définie comme étant le nombre moyen d'extrémités de polymères (liant ou pontant) et notée  $r$ , est supérieure à une valeur critique définissant le seuil de percolation. Cette valeur critique dépend du rapport entre le nombre de boucles et le nombre de liens. Le module élastique du système est nul pour des connectivités inférieures au seuil, et augmente, au dessus de seuil, avec la connectivité. Le système se comporte alors comme un fluide de Maxwell (Figs. 1.7 et 1.8). Le temps de relaxation dépend de la connectivité, de la fraction volumique en gouttelettes, et de la nature des polymères (taille de la partie hydrophile et/ou des parties hydrophobes).

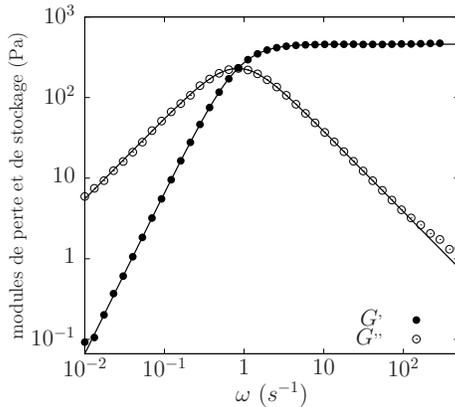


FIGURE 1.7 – Modules de pertes et de stockage pour une microémulsion connectée par des polymères de masse molaire 35kg/mol, ayant des extrémités hydrophiles comportant 18 atomes de carbone. La fraction volumique en gouttelettes d'huile est de  $\phi = 10\%$ , la connectivité vaut  $r = 4$ . Les courbes correspondent à des ajustements des expressions issues du modèle de Maxwell.

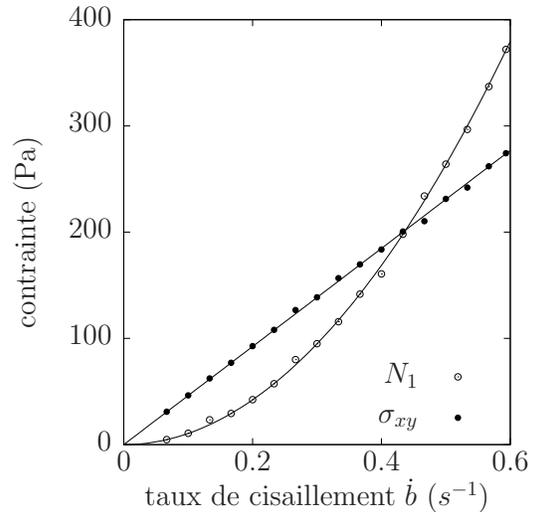


FIGURE 1.8 – Courbe d'écoulement (contrainte de cisaillement et première différence de contraintes normales) de la microémulsion connectée décrite Fig. 1.7. Les courbes correspondent aux expressions issues du modèle de Maxwell convecté supérieur, sans ajustement (le temps de relaxation et le module de cisaillement ont été déterminés par les ajustements de la figure 1.7) :  $\tau_{xy} \simeq \mu \lambda \dot{\gamma}$  et  $N_1 \simeq 2\mu \lambda^2 \dot{\gamma}^2$ .

Notons que le modèle de Maxwell convecté supérieur décrit correctement les propriétés rhéologiques linéaires **et** non linéaires du matériau sous cisaillement permanent (Fig. 1.8). Lorsque la limite est atteinte (voir par exemple la figure 6.1 de la section 6), l'échantillon présente des fractures. La valeur du taux de cisaillement maximale pour que le modèle de Maxwell convecté supérieur s'applique dépend de la fraction volumique et de la nature des polymères (taille des parties hydrophobe et hydrophile). Le domaine maxwellien est d'autant plus étendu que :

- les polymères sont longs : les microémulsions connectées par des polymères téléchéliques de masse

- molaire 35 kg/mole supportent de plus grandes déformations qu'avec des polymères de masse molaire 10 kg/mole,
- la fraction volumique est faible,
  - le seuil de percolation est proche.

## Bibliographie

- [1] C. Truesdell, W. Noll, and S.S. Antman. *The non-linear field theories of mechanics*. Springer-Verlag, New York, 1956.
- [2] G. Astarita and G. Marrucci. *Principles of Non-Newtonian Fluid Mechanics*. McGraw-Hill, 1974.
- [3] R.W. Ogden. *Non-Linear Elastic Deformations*. Ellis Horwood Limited, Chichester, 1984.
- [4] N.F. Stanley. *Agar*, chapter 7, pages 217–231. Taylor and Francis/CRC, Boca Raton, 2nd edition, 2006.
- [5] R. Lapasin and S. Pricl. *Rheology of Industrial Polysaccharides : Theory and Applications*. Blackie Academic Professional, Glasgow, 1995.
- [6] R.G. Larson. *The structure and the rheology of complex fluids*. Oxford University Press, New-York, 1999.
- [7] J.F. Berret, D.C. Roux, and G. Porte. Isotropic-to-nematic transition in wormlike micelles under shear. *J. Phys. II France*, 4 :1261–1279, 1994.
- [8] P. Fischer and H. Rehage. Rheological master curves of viscoelastic surfactant solutions by varying the solvent viscosity and temperature. *Langmuir*, 13 :7012–7020, 1997.
- [9] J. P. Rothstein. Transient extensional rheology of wormlike micelle solutions. *J. Rheol.*, 47 :1227–1247, 2003.
- [10] R Zana and E.W. Keler. *Giant Micelles. Properties and Applications*. Taylor and Francis, 2007.
- [11] M.E. Cates and S.J. Candau. Statics and dynamics of worm-like surfactant micelles. *Journal of physics - Condensed Matter*, 2 :6869–6892, 1990.
- [12] J.F. Berret, G. Porte, and J.P. Decruppe. Inhomogeneous shear flows of wormlike micelles : a master dynamic phase diagram. *Phys. Rev. E*, 55 :1668–1676, 1997.
- [13] V. Herle, J. Kohlbrecher, B. Pfister, P. Fischer, and E.J. Windhab. Alternating vorticity bands in a solution of wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :158302, 2007.
- [14] T. Annable, R. Buscall, R. Ettelaie, and D. Whittlestone. The rheology of solutions of associating polymers : comparison of experimental behaviour with transient network theory. *J. Rheol.*, 10 :695–726, 1993.
- [15] T. Annable, R. Buscall, R. Ettelaie, P. Shepherd, and D. Whittlestone. Influence of surfactants on the rheology of associating polymers in solution. *Langmuir*, 10 :1060–1070, 1994.
- [16] Y. Serrero, R. Aznar, G. Porte, J.F. Berret, D. Calvet, A. Collet, and M. Viguier. Associating polymers : From flowers to transient network. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :5584–5587, 1998.
- [17] A. Tripathi, G. H. McKinley, K.C. Tam, and R.D. Jenkins. Rheology and dynamics of associative polymers in shear and extension : Theory and experiments. *Macromolecules*, 39 :1981–1999, 2006.

- [18] M. Gradzielski, A. Rauscher, , and H. Hoffmann. Hydrophobically cross-linked micellar solutions - microstructure and properties of the solutions. *Journal de Physique IV*, 3 :65–79, 1993.
- [19] M. Filali, R. Aznar, M. Svensson, G. Porte, and J. Appell. Swollen micelles plus hydrophobically modified hydrosoluble polymers in aqueous solutions : Decoration versus bridging. a small angle neutron scattering study. *J. Phys. Chem.*, 34 :7293, 1999.
- [20] E. Michel, F. Molino, J. Kieffer, and G. Porte. Unstable flow and non-monotonic flow curves of transient networks. *J. Rheology*, 45 :1465–1477, 2001.



## Chapitre 2

# Instabilité de Saffman-Taylor et viscoélasticité

### Résumé :

Nous<sup>1</sup> avons étudié l'instabilité de surface qui se produit lorsqu'un fluide de Maxwell est poussé par de l'air dans une cellule de Hele-Shaw. La théorie et des expériences réalisées avec des microémulsions connectées de temps de relaxation et de modules élastiques différents montrent que les effets élastiques qui apparaissent dépendent, à l'ordre linéaire, d'un unique paramètre sans dimension que nous appelons  $\tilde{\lambda}$ . Pour de petites valeurs de ce paramètre, nous retrouvons les caractéristiques bien connues de l'instabilité de Saffman-Taylor. Les premiers effets viscoélastiques apparaissent lorsque  $\tilde{\lambda}$  est supérieur à l'unité, et le taux de croissance d'une perturbation diverge lorsque  $\tilde{\lambda}$  est plus grand que 10.

## 2.1 Introduction

L'instabilité de Saffman-Taylor se manifeste lorsqu'un fluide placé entre deux plaques parallèles finement espacées (cellule de Hele-Shaw) est poussé par un autre fluide, moins visqueux [4, 5]. L'interface des deux fluides est instable, ce qui conduit à la formation de motifs en forme de doigts. Ce phénomène, souvent appelé digitation visqueuse, est maintenant bien compris lorsque les fluides sont newtoniens [6, 7], et constitue le point de départ de théories récentes portant sur la morphogénèse [8].

Le cas où un des deux fluides n'est pas newtonien (fluides à seuil, fluides rhéofluidifiants, fluides viscoélastiques) a déjà fait l'objet de nombreux travaux [9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17]. En particulier, la propagation de fractures au sein du fluide visqueux a été observée expérimentalement [9, 10, 13, 17]; leur morphologie a été étudiée en détail [16, 14, 15]. Mais le mécanisme physique d'apparition de ces fractures demeurait incompris. De Gennes a proposé en 1987 un modèle [11] qui conduit effectivement à la nucléation de fractures dans ces conditions. Ce modèle, qui ne s'applique qu'à des fluides viscoélastiques ayant une structure microscopique très particulière (réseaux transitoires), manque de généralité. Nous avons donc voulu apporter une explication physique plus générale de la nucléation de fractures de fluides complexes dans une cellule de Hele-Shaw. Pour cela, nous avons étudié l'instabilité de Saffman-Taylor en considérant le modèle du fluide viscoélastique de Maxwell convecté supérieur [18, 19] et en allant bien au delà de l'étude de Wilson [12] qui s'était intéressé - d'un point de vue théorique - à ce même problème.

---

1. Travail effectué en collaboration avec Miguel Manna, L2C, Montpellier. Les articles que nous avons écrit sur ce sujet sont les références [1, 2, 3]

## 2.2 Position du problème

### 2.2.1 Fluides newtoniens

Nous rappelons ici quelques résultats concernant le cas où les fluides sont newtoniens. Considérons un fluide newtonien de viscosité  $\eta$  placé dans une cellule de Hele-Shaw d'épaisseur  $b$  et supposons que l'échelle de longueur caractéristique sur laquelle les grandeurs physiques changent parallèlement aux plaques est beaucoup plus grande que l'épaisseur de la cellule (ce qui constitue l'approximation de Hele-Shaw). Les équations de Navier-Stokes pour un fluide incompressible aux bas nombres de Reynolds conduisent alors à :

$$\langle \mathbf{v} \rangle = -\frac{b^2 \nabla P}{12\eta}, \quad (2.1)$$

où  $\langle \mathbf{v} \rangle$  est la vitesse du fluide moyennée sur l'épaisseur de la cellule et  $P$  est la pression (dont on peut montrer qu'elle ne varie pas sur l'épaisseur). Cette équation est la loi de Darcy. Introduisons les directions  $(x, y, z)$  :  $(x, z)$  dans le plan de la cellule, et  $y$  dans la direction de l'épaisseur (Fig. 2.1) La loi de Darcy (2.1) est valable

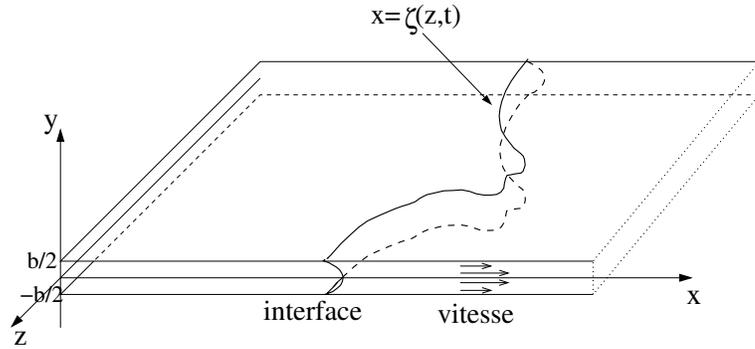


FIGURE 2.1 – Cellule de Hele-Shaw.

quel que soit le champ de pression  $P(x, y; t)$  pourvu que les variations spatiales se fassent sur des échelles de longueur beaucoup plus grandes que l'épaisseur, et que le nombre de Reynolds soit petit devant l'unité. Pour un fluide incompressible,  $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$  et donc, avec Eq.(2.1), nous obtenons :

$$\Delta P = 0. \quad (2.2)$$

Considérons une perturbation sinusoïdale de la pression, avec un vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  ( $\mathbf{k}$  dans le plan  $x, z$ ). Puisque la pression est à laplacien nul (Eq. (2.2)), cette perturbation décroît dans la direction de  $\mathbf{k}$  comme  $\exp(-\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ , où  $\mathbf{r}$  est le rayon vecteur (dans le plan  $x, z$ ).

Envisageons maintenant le cas où un fluide de viscosité négligeable (par exemple de l'air) pousse un fluide de viscosité  $\eta$ , dans la direction  $x$ . Notons  $P_{,x}^0$  le gradient de pression<sup>2</sup> qui est, dans ce cas, parallèle à la direction  $x$ . Supposons que le fluide se déplace dans le sens des  $x$  croissants, ce qui implique  $P_{,x}^0 < 0$ . L'exposant<sup>0</sup> indique qu'il s'agit de la pression d'un état non perturbé. Si la surface initialement plane est sujette à une perturbation sinusoïdale infinitésimale de vecteur  $k \parallel (Ox)$  à l'instant  $t_0$  de telle sorte que son équation soit (voir Fig. 2.2) :

$$x = x_0 + \zeta_0 \cos(kz), \quad (2.3)$$

alors, d'après ce qui précède, la perturbation du champ de pression dans le fluide visqueux est de la forme :

$$P^1(x, z; t_0) = P^1 \cos(kz) \exp(-k(x - x_0)), \quad (2.4)$$

2. Dans tout le manuscrit, la notation indiquée avec une virgule suivie d'une ou plusieurs variables désigne la dérivée par rapport à ces variables :  $f_{,x} \equiv \partial f / \partial x$ .

Le mécanisme de l'instabilité en découle :

Soit  $P^{air}$  la pression de l'air, homogène. Si les effets de la tension de surface sont négligeables,  $P^{air}$  est aussi la pression du fluide en n'importe quel point de l'interface. D'après (2.4), la profondeur de pénétration de la perturbation vaut  $1/k$  : les variations de la pression dans la direction de  $z$  sont significativement amorties à la distance  $1/k$  de la surface. Soit  $P'$  la valeur moyenne de la pression à cet endroit (voir Fig. 2.2). Le gradient moyen de pression dans la direction de  $x$  vaut environ  $-|P^{air} - P'|/(1/k - \zeta_0)$  au niveau d'une « bosse » (vers l'avant) de la surface. Il vaut environ  $-|P^{air} - P'|/(1/k + \zeta_0)$  au niveau d'un « creux ». Il est donc plus grand (en valeur absolue) aux bosses qu'aux creux. La loi de Darcy permet de déduire que la vitesse de la surface est plus grande au niveau des bosses qu'au niveau des creux : cette interface est donc instable (Fig. 2.2).

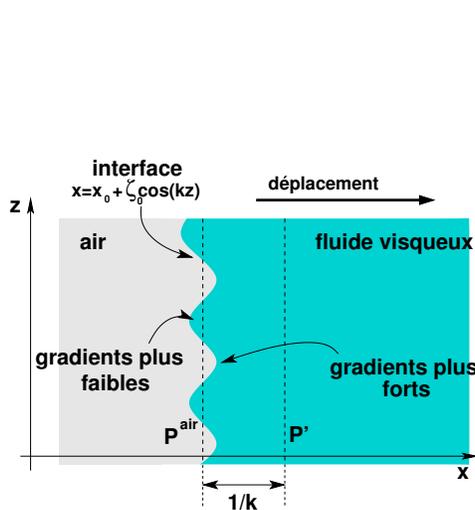


FIGURE 2.2 – Schéma pour expliquer l'origine physique de l'instabilité de Saffman-Taylor. La pression à l'interface étant égale à celle de l'air, le gradient de pression est plus important dans les zones où l'interface est la plus avancée. La vitesse de ces zones est donc plus grande, ce qui explique pourquoi l'interface est instable.

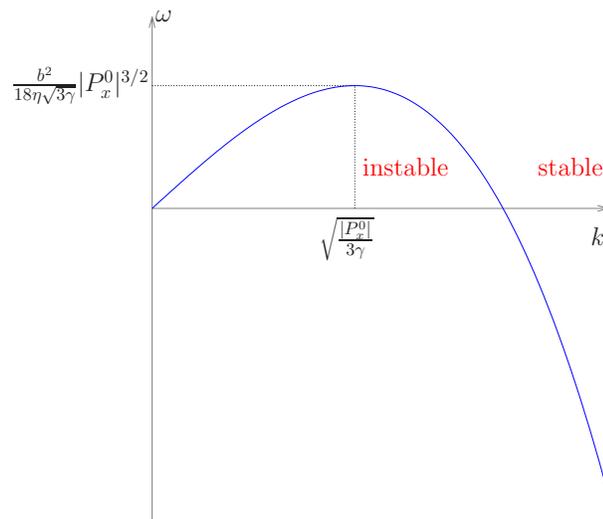


FIGURE 2.3 – Taux de croissance de l'instabilité en fonction du nombre d'onde.

Ce raisonnement fait fi de la tension interfaciale (il a été supposé que la pression est continue à la traversée de l'interface). Un calcul complet prenant en compte la tension de surface montre que, à l'ordre linéaire, une perturbation sinusoïdale croît avec le temps comme  $\exp(\omega t)$  où  $\omega$  est le taux de croissance [6, 7, 8].  $\omega$  dépend du nombre d'onde  $k$ , et peut être positif (interface instable) ou négatif (interface stable). Pour des valeurs données de la tension de surface (notée  $\gamma$ ), de la viscosité ( $\eta$ ) et du gradient de pression (toujours noté  $P_{,x}^0$ ), le taux de croissance de la perturbation (Fig. 2.3) :

- est nul pour  $k = 0$  (longueur d'onde infinie),
- atteint un maximum qui vaut

$$\omega_{max} = b^2(-P_{,x}^0)^{3/2}/(18\eta\sqrt{3\gamma}) \tag{2.5}$$

lorsque le nombre d'onde vaut  $k_{max} = \sqrt{-P_{,x}^0/(3\gamma)}$ ,

- diminue jusqu'à devenir négatif pour des nombres d'onde supérieurs à  $\sqrt{-P_{,x}^0/(\gamma)}$ .

L'interface est donc instable pour des longueurs d'onde supérieures à  $2\pi/\sqrt{-P_{,x}^0/(\gamma)}$ , et stable pour les longueurs d'onde plus petites que cette valeur. De façon attendue, la tension de surface stabilise, d'autant plus que la longueur d'onde est petite. Expérimentalement, la longueur d'onde observée durant les premiers

instants (lorsque l'analyse linéaire est valable) est celle correspondant au mode le moins stable. Elle vaut  $2\pi/k_{max}$  [20].

### 2.2.2 Fluides viscoélastiques

Supposons que le fluide newtonien soit remplacé par un fluide viscoélastique de Maxwell de même viscosité (le fluide poussant étant toujours l'air). Appelons  $\lambda$  le temps de relaxation du fluide : le fluide se comporte comme un solide élastique lorsqu'il est excité sur une gamme de fréquences supérieures à  $1/\lambda$ , et comme un fluide visqueux dans le cas contraire. Ainsi, si  $\frac{1}{\lambda} \gg \omega_{max}$ , où  $\omega_{max}$  est calculé avec Eq. (2.5) en prenant pour  $\eta$  la viscosité du fluide de Maxwell, aucun effet élastique n'est attendu puisque le temps caractéristique d'apparition de l'instabilité est alors beaucoup plus grand que le temps que met le fluide à dissiper l'énergie élastique en son sein. Par contre, si  $\frac{1}{\lambda} \ll \omega_{max}$ , alors l'énergie élastique n'a plus le temps d'être dissipée au fur et à mesure que l'instabilité se développe. Cette énergie est emmagasinée et s'accumule. Nous nous attendons donc à ce que quelque chose de particulier survienne. La viscoélasticité introduit un nouveau temps caractéristique dans le problème de Saffman-Taylor. Ce nouveau temps peut provoquer un phénomène analogue à une résonance.

Pour la suite, nous définissons le temps de relaxation réduit par :

$$\tilde{\lambda} = 18\sqrt{3}\lambda \cdot \omega_{max} = \frac{b^2(-P_{,x}^0)^{3/2}}{\mu\gamma^{1/2}}. \quad (2.6)$$

Le facteur  $18\sqrt{3}$  n'est là que pour alléger l'écriture. D'après cette définition, les effets élastiques devraient apparaître lorsque  $\tilde{\lambda}$  devient égal puis supérieur à l'unité.

Remarquons que  $\tilde{\lambda}$  ne dépend que du module de cisaillement  $\mu$  du fluide, de la tension de surface, du gradient de pression et de l'épaisseur de la cellule. D'après Eq. (2.6), les effets élastiques sont attendus (pour une tension de surface et une pression fixées) pour des fluides ayant un module de cisaillement petit, peu importe la valeur du temps de relaxation. Pour fixer les idées, imposons une surpression d'une atmosphère dans une cellule de 10 cm de long et d'un demi millimètre d'épaisseur. En prenant une tension de surface avec l'air de 50 mN/m, le module de cisaillement doit être inférieur à  $\mu = 110$  Pa pour que  $\tilde{\lambda}$  soit supérieur à 1. Ceci correspond à des matériaux très mous.

## 2.3 Théorie

Nous présentons ci-dessous la théorie que nous avons développée dans le cadre de cette étude.

### 2.3.1 Equations de base

Les équations du mouvement pour un écoulement incompressible et isotherme sont :

$$\rho \frac{D\mathbf{v}}{Dt} = \nabla \cdot \hat{\tau}', \quad (2.7)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0, \quad (2.8)$$

auxquelles il faut ajouter l'équation constitutive permettant de calculer le tenseur des contraintes  $\hat{\tau}'$ . Notons  $\mathbf{v} = (u, v, w)$  le champ des vitesses.  $D/Dt = \partial_t + \mathbf{v} \cdot \nabla$  est la dérivée particulière, et  $\rho$  est la densité du fluide, supposée constante. On définit  $\hat{\tau}$ , le déviateur du tenseur des contraintes par

$$\hat{\tau} = P\hat{\mathcal{L}} + \hat{\tau}', \quad (2.9)$$

où  $P$  est la pression totale et  $\hat{\mathcal{I}}$  l'identité. Nous considérons ici un fluide décrit par le modèle de Maxwell convecté supérieur dont l'équation constitutive est [18, 21] :

$$\frac{\partial \hat{\tau}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \hat{\tau} - \{ \nabla \mathbf{v} \cdot \hat{\tau} + \hat{\tau} \cdot \nabla \mathbf{v}^T \} + \frac{\hat{\tau}}{\lambda} = 2\mu \hat{\mathcal{D}}, \quad (2.10)$$

avec  $\hat{\mathcal{D}} = (\nabla \mathbf{v} + \nabla \mathbf{v}^T)/2$ . Pour étudier la stabilité de l'interface lorsque ce fluide, placé dans une cellule de Hele-Shaw, est poussé par de l'air, il faut ajouter aux équations (2.7), (2.8) et (2.10) les conditions aux limites. Le domaine  $\Omega$  occupé par le fluide est (Fig. 2.1) :

$$\Omega \begin{cases} \zeta < x < \infty, \\ -\frac{b}{2} < y < \frac{b}{2}, \\ -\infty \leq z \leq \infty, \end{cases} \quad (2.11)$$

où  $x = \zeta(z,t)$  définit la surface entre l'air et le fluide. Puisque l'épaisseur  $b$  est infiniment plus petite que toute autre dimension, nous ne tenons pas compte de la dépendance de  $\zeta$  suivant  $y$ . L'équation de l'interface est :

$$S(x,z,t) = 0 \text{ avec } S(x,z,t) = x - \zeta(z,t) = 0.$$

L'interface étant imperméable,  $\frac{DS}{Dt} = 0$  donc :

$$-\zeta_{,t} + u - w\zeta_{,z} = 0 \text{ en } x = \zeta(z,t). \quad (2.12)$$

La condition de non-glissement du fluide à la surface de la cellule s'écrit :

$$u = v = w = 0 \text{ en } y = \pm \frac{b}{2}. \quad (2.13)$$

Enfin, la condition de continuité de la contrainte à travers l'interface provient directement de la loi de Laplace :

$$(\hat{\tau} - P\hat{\mathcal{I}}) \cdot \mathbf{N} = \gamma(\kappa_1 + \kappa_2) \cdot \mathbf{N}, \quad (2.14)$$

où  $\kappa_1$  et  $\kappa_2$  sont les rayons de courbure principaux de l'interface,  $\mathbf{N}$  est le vecteur normal à l'interface, et  $\mathcal{P}$  est la pression de l'air. En négligeant les effets tridimensionnels [22, 23], nous obtenons :

$$\langle (\hat{\tau} - P\hat{\mathcal{I}}) \cdot \mathbf{N} \rangle = \langle \gamma \kappa_1 \cdot \mathbf{N} \rangle. \quad (2.15)$$

avec

$$\mathbf{N} = \left( \frac{1}{\sqrt{1 + \zeta_{,z}^2}}, 0, \frac{-\zeta_{,z}}{\sqrt{1 + \zeta_{,z}^2}} \right) \quad (2.16)$$

et

$$\kappa_1 = \frac{\zeta_{,zz}}{(1 + \zeta_{,z}^2)^{3/2}}. \quad (2.17)$$

### 2.3.2 Echelle pertinente pour la pression

Les équations (2.7), (2.8) et (2.10), avec les conditions aux limites (2.12), (2.13) et (2.14) permettent de résoudre le problème de Saffman-Taylor pour un fluide de Maxwell convecté supérieur poussé par de l'air. Afin d'en extraire l'information physiquement intéressante, nous déterminons dans un premier temps le domaine des pressions pour lesquelles les effets élastiques peuvent se manifester. Il s'agit là du point clé de cette étude.

Considérons d'abord l'écoulement unidimensionnel d'un fluide de Maxwell dans un champ de pression à gradient constant et homogène :  $\nabla P = (P_{,x}, 0, P_{,z})$ . Le champ des vitesses  $\mathbf{v} = (u, v, w)$  et le déviateur du tenseur des contraintes peuvent être calculés grâce aux équations (2.7), (2.8) et (2.10). Nous trouvons :

$$\tau_{xx} = \frac{2\lambda P_{,x}^2}{\eta} y^2, \quad \tau_{zz} = \frac{2\lambda P_{,z}^2}{\eta} y^2, \quad \tau_{xy} = P_{,x} y, \quad \tau_{yz} = P_{,z} y, \quad \tau_{xz} = \frac{2\lambda P_{,x} P_{,z}}{\eta} y^2, \quad (2.18)$$

$$u = \frac{P_{,x}}{2\eta} \left( y^2 - \frac{b^2}{4} \right), \quad v = 0, \quad w = \frac{P_{,z}}{2\eta} \left( y^2 - \frac{b^2}{4} \right). \quad (2.19)$$

Considérons maintenant un champ de pression avec un gradient a priori non constant et non homogène. Notons  $\mathcal{P}$  la pression caractéristique,  $\mathcal{L}$  l'échelle de longueur caractéristique associée aux variations latérales, et  $\epsilon = b/\mathcal{L}$ . Dans le cadre de l'approximation de Hele-Shaw,  $\epsilon$  est un paramètre infiniment petit.

L'ordre de grandeur de  $P_{,x}$  et de  $P_{,z}$  est  $\mathcal{P}/\mathcal{L}$ . L'ordre de grandeur de  $P_{,y}$  est  $\mathcal{P}/b$ . Donc, d'après les équations (2.19) :

$$u \sim \frac{\mathcal{P}\mathcal{L}}{\eta} \epsilon^2, \quad v = 0, \quad w \sim \frac{\mathcal{P}\mathcal{L}}{\eta} \epsilon^2. \quad (2.20)$$

De même, d'après les équations (2.18) :

$$\tau_{xy}, \tau_{zy} \sim \epsilon \mathcal{P} \quad \tau_{xz}, \tau_{xx}, \tau_{zz} \sim \epsilon^2 \mathcal{P}^2 / \mu. \quad (2.21)$$

Nous en déduisons aussi l'ordre de grandeur du temps caractéristique sur lequel se produisent des variations :

$$t \sim \mathcal{L}/u \sim \eta / (\mathcal{P}\epsilon^2). \quad (2.22)$$

Ces ordres de grandeurs ont été déterminés uniquement à partir d'une pression caractéristique  $\mathcal{P}$  et d'une longueur caractéristique  $\mathcal{L}$ . Dans la suite, nous allons fixer le domaine intéressant pour la pression  $\mathcal{P}$ . Puis, en comparant les ordres de grandeurs des différents termes, nous allons simplifier les équations (2.7), (2.8), (2.10), (2.12), (2.13) et (2.14).

Le nombre de Deborah est le rapport entre le temps de relaxation du fluide et le temps caractéristique de l'écoulement. Il vaut, d'après l'équation (2.22) :

$$De = \frac{\lambda}{\eta / (\mathcal{P}\epsilon^2)} = \frac{\mathcal{P}}{\mu} \epsilon^2. \quad (2.23)$$

Pour que les effets élastiques puissent se faire sentir  $De$  ne doit pas être beaucoup plus petit que l'unité, i.e.,  $\mathcal{P} \sim \mu/\epsilon^2$  ou  $\mathcal{P} > \mu/\epsilon^2$ . Ceci détermine le domaine des pressions pour lesquelles les effets élastiques peuvent se faire sentir, dans la cellule de Hele-Shaw. Dans la suite, nous allons appliquer ce « scaling » au cas de l'instabilité de Saffman-Taylor. En utilisant, compte-tenu de ce « scaling », les ordres de grandeurs donnés par les équations (2.20), (2.21) et (2.22), les équations de base se simplifient. Prenons par exemple la composante  $x$  de l'équation (2.10) :

$$\tau_{xx} + \lambda \{ \tau_{xx,t} + u \tau_{xx,x} + v \tau_{xx,y} + w \tau_{xx,z} - u_{,x} \tau_{xx} - u_{,y} \tau_{yx} - u_{,z} \tau_{zx} - \tau_{xx} u_{,x} - \tau_{xy} u_{,y} - \tau_{xz} u_{,z} \} = 2\eta u_{,x} \quad (2.24)$$

Introduisons les quantités adimensionnées (surlignées) suivantes (issues des équations (2.20), (2.21) et (2.22)) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau_{xy} = \epsilon \mathcal{P} \bar{\tau}_{xy} \\ \tau_{zy} = \epsilon \mathcal{P} \bar{\tau}_{zy} \\ \tau_{xz} = \epsilon^2 \frac{\mathcal{P}^2}{\mu} \bar{\tau}_{xz} \\ \tau_{xx} = \epsilon^2 \frac{\mathcal{P}^2}{\mu} \bar{\tau}_{xx} \\ \tau_{zz} = \epsilon^2 \frac{\mathcal{P}^2}{\mu} \bar{\tau}_{zz} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} u = \frac{\mathcal{P}\mathcal{L}}{\eta} \epsilon^2 \bar{u} \\ v = 0 \\ w = \frac{\mathcal{P}\mathcal{L}}{\eta} \epsilon^2 \bar{w} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} t = \frac{\eta}{\mathcal{P}} \frac{\bar{t}}{\epsilon^2} \\ P = \mathcal{P} \bar{P} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} x = \mathcal{L} \bar{x} \\ y = b \bar{y} \\ z = \mathcal{L} \bar{z} \end{array} \right.$$

En reportant dans l'équation (2.24) nous obtenons :

$$\frac{\mathcal{P}}{\mu}\bar{\tau}_{xx} - \frac{2\mathcal{P}}{\mu}\bar{u}_{,y}\bar{\tau}_{xy} + \epsilon^2 \left(\frac{\mathcal{P}}{\mu}\right)^2 [\bar{\tau}_{xx,t} + \bar{u}\bar{\tau}_{xx,x} + \bar{w}\bar{\tau}_{xx,z} - 2\bar{u}_{,x}\bar{\tau}_{xx}] - 2\epsilon^2 \left(\frac{\mathcal{P}}{\mu}\right)^2 \bar{u}_{,z}\bar{\tau}_{xz} = 2\bar{u}_{,x}, \quad (2.25)$$

où les dérivations se font par rapport aux grandeurs adimensionnées (que l'on n'a pas surlignées afin de ne pas surcharger l'écriture). Plaçons-nous maintenant dans le cas où le nombre de Deborah ( $De$ ) n'est pas infiniment petit. D'après ce qui précède, cela revient à supposer que  $\mathcal{P} \sim \mu/\epsilon^2$  ou  $\mathcal{P} > \mu/\epsilon^2$ . Faisons tendre  $\epsilon$  vers 0 (approximation de Hele-Shaw). L'équation (2.25) se simplifie :

$$\frac{\mathcal{P}}{\mu}\bar{\tau}_{xx} - \frac{2\mathcal{P}}{\mu}\bar{u}_{,y}\bar{\tau}_{xy} + \epsilon^2 \left(\frac{\mathcal{P}}{\mu}\right)^2 [\bar{\tau}_{xx,t} + \bar{u}\bar{\tau}_{xx,x} + \bar{w}\bar{\tau}_{xx,z} - 2\bar{u}_{,x}\bar{\tau}_{xx}] - 2\epsilon^2 \left(\frac{\mathcal{P}}{\mu}\right)^2 \bar{u}_{,z}\bar{\tau}_{xz} = 0, \quad (2.26)$$

et si l'on revient aux grandeurs avec dimensions :

$$\tau_{xx} + \lambda\{\tau_{xx,t} + u\tau_{xx,x} + w\tau_{xx,z} - 2u_{,y}\tau_{yx} - 2u_{,z}\tau_{zx} - 2\tau_{xx}u_{,x}\} = 0. \quad (2.27)$$

En conclusion, le choix du domaine des pressions a permis, compte-tenu de l'approximation de Hele-Shaw, de simplifier l'équation (2.24) en (2.27).

Les autres équations des systèmes (2.7), (2.10) et (2.14) se simplifient suivant ce même schéma, conduisant à un nouveau système d'équation avec lequel la résolution du problème devient possible.

### 2.3.3 Perturbation de l'interface plane

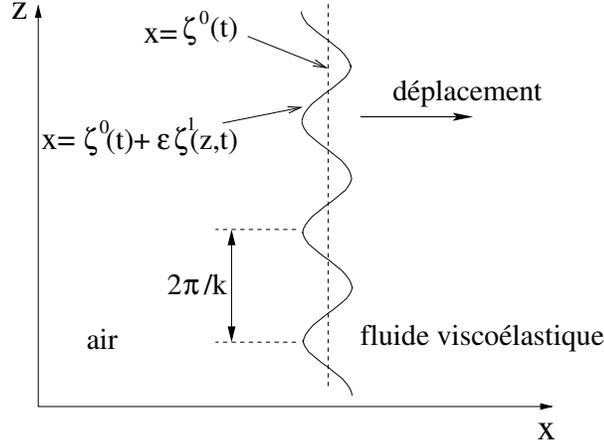
Considérons un fluide viscoélastique poussé par de l'air dans une cellule de Hele-Shaw (suivant la direction  $x$ ) par le gradient de pression  $\nabla P = (P_{,x}^0, 0, 0)$ . Supposons que  $P_{,x}^0$  soit négatif, de telle sorte que le fluide se déplace de la gauche ( $x < 0$ ) vers la droite ( $x > 0$ ). Dans l'état non perturbé, les équations (2.18) et (2.19) permettent de calculer le champ des vitesses et le tenseur des contraintes (en prenant dans ces équations  $P_{,x} = P_{,x}^0$  et  $P_{,z} = 0$ ). Le champ des vitesses est  $(u^0(y), 0, 0)$ , le déviateur du tenseur des contraintes est  $\hat{\tau}^0$  et l'équation de l'interface est  $x = \zeta^0(t) = \langle u^0 \rangle t$ . L'exposant <sup>0</sup> indique que ces grandeurs sont relatives à l'état non perturbé.

Dans l'état perturbé (interface non plane), la vitesse est notée  $(u^0(y) + \epsilon u^1(x, y, z; t), 0, \epsilon w^1(x, y, z; t))$ , la pression est notée  $P^0 + \epsilon P^1(x, z; t)$ , le déviateur du tenseur des contraintes est noté  $\hat{\tau} = \hat{\tau}^0(y) + \epsilon \hat{\tau}^1(x, y, z; t)$ , et  $x = \zeta^0(t) + \epsilon \zeta^1(z; t)$  est l'équation de l'interface. L'exposant <sup>1</sup> sert à indiquer les perturbations des différentes grandeurs.

Dans la suite, nous nous intéressons à l'évolution temporelle d'une perturbation sinusoïdale de l'interface qui a lieu à l'instant  $t = 0$ . Soit  $k$  le nombre d'onde associé à cette perturbation. Les perturbations de l'équation de la surface, des composantes des vitesses, de la pression et des composantes du tenseur des déformations sont de la forme (Fig. 2.4) :

$$\begin{cases} \zeta^1(z; t) = \zeta \cos(kz)e^{\omega t} \\ u^1(x, y, z; t) = u(y) \cos(kz)e^{\omega t} e^{-\sigma(x-\zeta^0(t))} \\ w^1(x, y, z; t) = w(y) \sin(kz)e^{\omega t} e^{-\sigma(x-\zeta^0(t))} \\ P^1(x, z; t) = P \cos(kz)e^{\omega t} e^{-\sigma(x-\zeta^0(t))} \\ \tau_{xx}^1(x, y, z, t) = \tau_{xx}(y) \cos(kz)e^{\omega t} e^{-\sigma(x-\zeta^0(t))}, \dots, \end{cases} \quad (2.28)$$

où  $\sigma$  est la profondeur de pénétration de la perturbation, inconnue à ce stade. Avec ces notations,  $\zeta$ ,  $u(y)$ ,  $w(y)$ ,  $P$  et  $\tau_{ij}(y)$  sont les amplitudes de la perturbation. En reportant ces expressions dans les équations (2.7), (2.10) et (2.14) qui ont entre temps été simplifiées en se basant sur le « scaling » de la pression (comme

FIGURE 2.4 – Perturbation sinusoïdale de vecteur d'onde  $k$ .

indiqué ci-dessus) et en ne retenant que l'ordre linéaire en  $\epsilon$ , nous obtenons (voir les références [2, 3] pour plus de détails) :

$$k = \sigma,$$

puis l'équation différentielle pour  $u(y)$  :

$$k \left( 1 + \lambda\omega - \lambda k \frac{P_{,x}^0}{2\eta} (y^2 - b^2/4) \right) P = -\lambda k \left( \frac{2k\lambda P_{,x}^0{}^2}{\eta} y^2 - P_{,x}^0 \right) u + 2\lambda k P_{,x}^0 y u_{,y} - \eta u_{,yy}. \quad (2.29)$$

Avec les conditions aux limites  $u(\pm b/2) = 0$ , cette équation permet de calculer  $u(y)$ .

Dans la suite, nous choisissons d'adimensionner le nombre d'onde  $k$  avec la valeur de nombre d'onde correspondant au maximum du taux de croissance dans le cas où le fluide serait newtonien (même viscosité, mêmes conditions de pression, même tension de surface, Eq. (2.5)), et d'adimensionner le taux de croissance  $\omega$  avec la valeur du maximum du taux de croissance dans le cas newtonien :

$$\begin{cases} \tilde{k} = \sqrt{-\frac{\gamma}{P_{,x}^0}} k, \\ \tilde{\omega} = \frac{\eta \gamma^{1/2}}{b^2 (-P_{,x}^0)^{3/2}} \omega. \end{cases} \quad (2.30)$$

La solution de (2.29) peut être écrite sous la forme :

$$u(y) = \frac{P b^2 \tilde{k}}{\eta} \sqrt{-\frac{P_{,x}^0}{\gamma}} a(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y). \quad (2.31)$$

De même, la composante  $\tau_{xx}$  du tenseur des contraintes s'écrit :

$$\tau_{xx} = -2\tilde{k}\tilde{\lambda}Pb(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y), \quad (2.32)$$

où  $\tilde{\lambda}$  est le temps de relaxation réduit défini par 2.6. La fonction  $a(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y)$  se calcule à partir de l'équation différentielle (2.29) avec la condition aux limites  $u(y = \pm b/2) = 0$ . La fonction  $b(\tilde{k}, \tilde{\omega}, y)$  se déduit de  $a$ .

### 2.3.4 Analyse linéaire de la stabilité

L'équation de continuité de la contrainte à travers l'interface (Eq. (2.14)) se simplifie, au premier ordre en  $\epsilon$ , en :

$$\zeta P_{,x}^0 + P - \langle \tau_{xx} \rangle = -\gamma k^2 \zeta. \quad (2.33)$$

La condition d'imperméabilité de l'interface implique  $\langle u \rangle / \omega = \zeta$ . On obtient alors, d'après Eq. (2.33) :

$$\left[ \frac{\langle u \rangle P_{,x}^0}{\omega} + P - \langle \tau_{xx} \rangle \right] = -\frac{\gamma k^2 \langle u \rangle}{\omega}, \quad (2.34)$$

et, d'après Eqs. (2.31) et (2.32) :

$$\frac{\tilde{k}(1 - \tilde{k}^2)}{\tilde{\omega}} \langle a(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y) \rangle = 2\tilde{k}\tilde{\lambda} \langle b(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y) \rangle + 1. \quad (2.35)$$

Les moyennes sont prises entre  $y = -b/2$  et  $y = b/2$ . L'équation (2.35) est une relation liant le nombre d'onde adimensionné  $\tilde{k}$ , le taux de croissance adimensionné  $\tilde{\omega}$  et le temps de relaxation réduit du fluide. Cette relation permet donc d'obtenir  $\tilde{\omega}$  en fonction de  $\tilde{k}$  pour une valeur donnée de  $\tilde{\lambda}$ .

Notons que, lorsque  $\tilde{\lambda} \rightarrow 0$ , nous trouvons  $\langle a(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y) \rangle \rightarrow 1/12$  et  $\tilde{\lambda} \langle b(\tilde{k}, \tilde{\omega}, \tilde{\lambda}, y) \rangle \rightarrow 0$  si bien que l'équation (2.35) se simplifie, pour  $\tilde{\lambda} \rightarrow 0$ , en :

$$\tilde{\omega} = \frac{1}{12} \tilde{k}(1 - \tilde{k}), \quad (2.36)$$

qui est précisément l'équation trouvée par Saffman et Taylor dans le cas d'un fluide purement newtonien poussé par de l'air [5].

Nous avons tracé (Fig. 2.5) le taux de croissance adimensionné  $\tilde{\omega}$  en fonction du produit  $\tilde{k}\tilde{\lambda}$  pour différentes valeurs de  $\tilde{\lambda}$ . Par définition,  $\tilde{k}\tilde{\lambda}$  s'identifie exactement au nombre de Deborah puisque (d'après les équations (2.6) et (2.30)) :

$$\tilde{k}\tilde{\lambda} = \frac{b^2(-P_{,x}^0)k}{\mu} \sim \epsilon^2 \frac{P}{\mu} \equiv De.$$

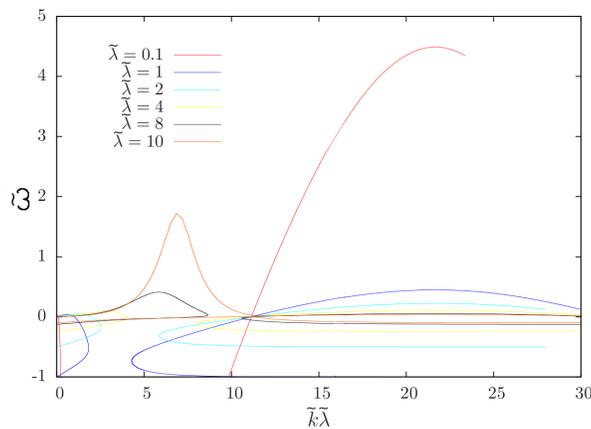


FIGURE 2.5 – Taux de croissance adimensionné  $\tilde{\omega}$  en fonction du nombre de Deborah  $\tilde{k}\tilde{\lambda}$ , pour différentes valeurs du temps de relaxation réduit  $\tilde{\lambda}$ .

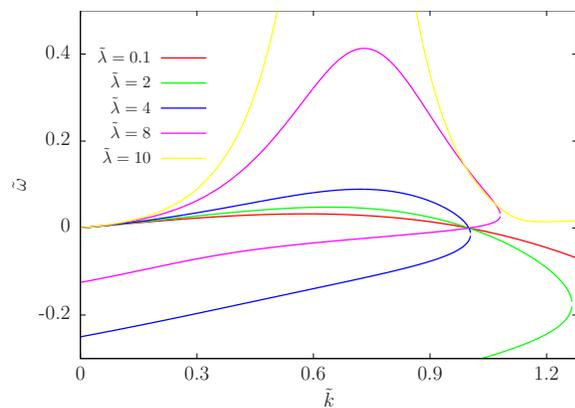


FIGURE 2.6 – Taux de croissance adimensionné en fonction du nombre d'onde adimensionné  $\tilde{k}$  (variant entre 0 et 1,2 uniquement), pour différentes valeurs de  $\tilde{\lambda}$ .

Ces courbes sont bien plus compliquées que la courbe unique obtenue pour un fluide newtonien. Les courbes correspondant à une valeur fixée de  $\tilde{\lambda} < 8$  comportent deux branches distinctes (Fig. 2.5). Une branche relative aux faibles valeurs de  $\tilde{\lambda}\tilde{k}$  (« à gauche »), et une autre relative aux grandes valeurs de  $\tilde{\lambda}\tilde{k}$  (« à droite »). La branche relative aux grandes valeurs de  $\tilde{\lambda}\tilde{k}$  n'a pas été prédite par Wilson [12] qui a étudié numériquement l'instabilité de Saffman-Taylor en faisant des approximations différentes des nôtres. Cette branche, qui est donc associée à des nombres de Deborah élevés, correspond à une situation où les effets élastiques sont dominants. Nous y reviendrons en fin de discussion.

### 2.3.5 Régime viscoélastique

Concentrons-nous sur la branche correspondant aux faibles valeurs de  $\tilde{\lambda}\tilde{k}$ , c'est-à-dire à des nombres de Deborah qui ne sont pas beaucoup plus grands que 1. Dans ce régime, effets élastiques et effets visqueux doivent être du même ordre de grandeur, et donc coexister. Le taux de croissance adimensionné  $\tilde{\omega}$  est tracé, Fig. 2.6, en fonction de  $\tilde{k}$  (et non pas en fonction de  $\tilde{\lambda}\tilde{k}$  comme à la figure 2.5, pour permettre la comparaison avec le cas newtonien où  $\tilde{\lambda} = 0$ ), pour des valeurs de  $\tilde{k}$  comprises entre 0 et 1,2. Ceci revient à ne tracer que les branches « de gauche » des courbes de la figure 2.5. Pour  $\tilde{\lambda} = 0,1$ , la courbe tracée se confond avec celle qu'on aurait pour un fluide newtonien. Pour des valeurs plus grandes de  $\tilde{\lambda}$ , les courbes sont multivaluées : pour une valeur donnée de  $\tilde{\lambda} > 0$  et de  $\tilde{k}$ , il peut exister deux valeurs possibles du taux de croissance de l'instabilité, ce qui constitue une première différence importante avec le cas newtonien. Cependant, cet effet n'a pas grand intérêt en pratique dans la mesure où seul le mode ayant le taux de croissance maximal est observable expérimentalement, les autres modes, y compris celui ayant le même nombre d'onde, étant dominés.

En observant la figure 2.6 nous constatons que la valeur du nombre d'onde  $\tilde{k}$  rendant  $\tilde{\omega}$  maximum dépend de  $\tilde{\lambda}$  : il vaut  $1/\sqrt{3}$  lorsque  $\tilde{\lambda} \rightarrow 0$ , augmente lorsque  $\tilde{\lambda}$  augmente, passe par un maximum pour  $\tilde{\lambda} \simeq 6$  puis diminue (figure 2.7). La longueur d'onde qui se développe à l'ordre linéaire dépend donc de la valeur de  $\tilde{\lambda}$  : il y a là un premier effet élastique a priori observable (voir la section 2.4). Cette dépendance n'a pas été prédite par Wilson.

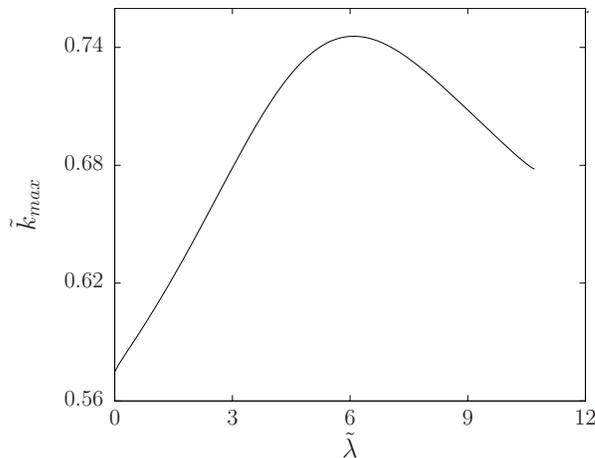


FIGURE 2.7 – Nombre d'onde (adimensionné) correspondant au taux de croissance maximal en fonction  $\tilde{\lambda}$ .

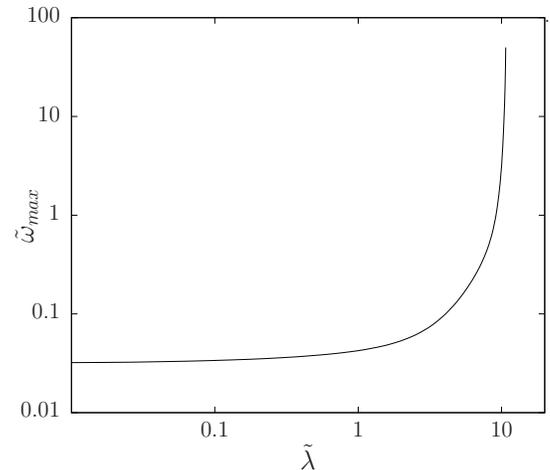


FIGURE 2.8 – Valeur du maximum du taux de croissance (adimensionné) en fonction du temps de relaxation réduit. On remarque une divergence pour  $\tilde{\lambda} = 10,2$ .

Plus remarquable encore est la divergence de la valeur maximale du taux de croissance qui a lieu lorsque  $\tilde{\lambda} > 10,2$  : en augmentant progressivement  $\tilde{\lambda}$  à partir de 0, le maximum de  $\tilde{\omega}$  est de plus en plus grand (voir

la figure 2.6), et devient non borné à partir de cette valeur critique de  $\tilde{\lambda}$  (figure 2.8). Cet effet n'a pas été prédit par Wilson. Un taux de croissance qui diverge reviendrait à une vitesse infinie de certains points de l'interface, ce qui n'est pas réaliste. Dans ce cas, l'analyse linéaire cesse d'être valable, et la prise en compte de termes supérieurs dans le développement perturbatif est nécessaire. A cette divergence est donc associé un régime différent pour l'apparition de l'instabilité. Nous verrons dans la suite, grâce à l'analyse de résultats expérimentaux, que ce nouveau régime ( $\tilde{\lambda} > 10,2$ ) se traduit par la formation de motifs très différents de ceux observés lorsque  $\tilde{\lambda} < 10,2$ .

Nous pouvons expliquer cette transition entre les deux régimes en considérant l'effet de la contrainte normale  $\tau_{xx}$ . Réécrivons l'équation (2.34) sous la forme :

$$\omega = \frac{P_{,x}^0 - \gamma k^2}{P - \langle \tau_{xx} \rangle} \langle u \rangle. \quad (2.37)$$

Dans cette équation,  $P_{,x}^0$  est le gradient de pression non perturbé, et  $P$  est l'amplitude de la perturbation de la pression (Eqs. (2.28)). Pour un fluide newtonien, la contrainte normale  $\tau_{xx}$  est nulle. Elle est par contre non nulle pour un fluide viscoélastique.  $\tau_{xx}$  augmente au fur et à mesure que les effets élastiques deviennent importants, c'est-à-dire quand  $\tilde{\lambda}$  augmente. Pour une certaine valeur de  $\tilde{\lambda}$ ,  $\langle \tau_{xx} \rangle$  sera, pour une valeur de  $k$ , égal à l'amplitude  $P$  de la perturbation de la pression. L'équation de continuité de la contrainte écrite sous la forme (2.37) montre qu'alors  $\omega = \infty$ . La composante normale de la contrainte ( $\tau_{xx}$ ) est donc responsable de cette divergence. Pour arriver à cette conclusion, nous avons considéré le modèle de Maxwell convecté supérieur. Cette contrainte normale existe, avec certainement des caractéristiques différentes, pour tous les fluides présentant de l'élasticité. Nous pouvons postuler que le raisonnement précédent se généralise à l'ensemble des fluides viscoélastiques : existence d'un seuil correspondant à la situation où l'amplitude de la perturbation de la contrainte normale est égale à l'amplitude de la perturbation de la pression.

### 2.3.6 Régime élastique

Comme nous l'avons signalé, les courbes représentant le taux de croissance en fonction du produit du vecteur d'onde et du temps de relaxation (adimensionnés) comportent en général deux branches disjointes (Fig. 2.5). La branche « de droite » correspond aux grands nombres de Deborah, pour lesquels les effets élastiques dominent les effets visqueux. Nous remarquons que :

- pour chaque branche « élastique », le taux de croissance est maximum pour un vecteur d'onde  $\tilde{k}$  de l'ordre de  $20/\tilde{\lambda}$ ,
- la valeur du maximum du taux de croissance des branches « élastiques » est d'autant plus grand que  $\tilde{\lambda}$  est petit. Pour  $\tilde{\lambda} < 4$ , le maximum absolu est situé sur la branche « élastique ».

Ce dernier point peut sembler troublant : puisque le maximum absolu du taux de croissance se trouve sur la branche « élastique », cela signifie que le régime linéaire que l'on doit observer expérimentalement correspond à cette branche, pourvu que  $\tilde{\lambda} < 4$ . En examinant de plus près la situation, nous nous apercevons que le nombre d'onde correspondant contredit quasiment toujours l'approximation de Hele-Shaw. En effet, par définition de  $\tilde{\lambda}$ ,  $\tilde{\lambda} < 4$  implique que :

$$-P_{,x}^0 < \left( \frac{4\mu\gamma^{1/2}}{b^2} \right)^{2/3}. \quad (2.38)$$

Le nombre d'onde  $k_{max}$  correspondant au maximum de  $\omega$  étant tel que  $\tilde{k}\tilde{\lambda} \simeq 20$ , nous déduisons de la condition (2.38) sur le nombre d'onde :

$$k_{max} = \frac{20\mu}{-b^2 P_{,x}^0} > 20 \left( \frac{\mu}{16b^2\gamma} \right)^{1/3}. \quad (2.39)$$

Par ailleurs, nous avons supposé depuis le début que (approximation de Hele-Shaw) :

$$k_{max} \ll \frac{1}{b}. \quad (2.40)$$

Pour que les conditions (2.39) et (2.40) puissent être simultanément vérifiées, il est nécessaire que :

$$b \ll \frac{1}{200} \frac{\gamma}{\mu}. \quad (2.41)$$

$\gamma/\mu$  est la longueur élasto-capillaire. Cette longueur, qui est la plupart du temps microscopique, intervient lorsque les effets de la tension de surface entrent en compétition avec l'élasticité d'un solide (voir par exemple la section 3). L'équation (2.41) fixe une condition pour que le maximum de la branche « élastique » ait un sens physique. La plupart des cellules de Hele-Shaw ont une épaisseur  $b$  supérieure 250 microns. La tension de surface d'un fluide avec l'air est rarement plus grande que 70 mN/m. Donc, pour que la condition (2.41) soit vérifiée, il faut que le module de cisaillement soit inférieur à 1,5 Pa. Un tel module de cisaillement n'est pas réaliste. Par contre, si l'on pouvait utiliser une cellule d'épaisseur  $b = 10 \mu m$  (ce qui est possible en utilisant des méthodes de microfluidique, mais poserait des difficultés en terme de mouillage), l'effet serait observable pour des fluides de modules élastiques inférieurs à 35 Pa, ce qui devient réaliste.

## 2.4 Résultats expérimentaux

### 2.4.1 Fluides

La plupart des fluides complexes sont viscoélastiques, mais présentent, en plus de cette viscoélasticité, d'autres caractéristiques non newtoniennes, comme un seuil de contrainte d'écoulement, un rhéoépaississement, une rhéofluidification, etc. Afin d'étudier spécifiquement les effets venant de la viscoélasticité, il est important d'utiliser des fluides suivant au plus près le modèle de Maxwell sur toute la gamme de taux de cisaillement qui interviennent lors d'une expérience.

L'étude théorique présentée ci-dessus montre qu'il est intéressant de se placer dans des conditions où le paramètre sans dimension  $\tilde{\lambda}$  peut prendre des valeurs supérieures à 10. Considérons une cellule de Hele-Shaw de dimensions « habituelles » : une épaisseur  $b \sim 500 \mu m$  et une longueur d'une dizaine de centimètres. Supposons que l'air soit injecté sous une pression de  $0,5 \cdot 10^5 Pa$  (0,5 atm). Sur une longueur de 10 cm, cela correspond à un gradient  $P_{,x} \sim 5 \cdot 10^5 Pa/m$ . En prenant une tension de surface  $\gamma \sim 40 mN/m$  (ce qui est un bon ordre de grandeur pour un fluide complexe contenant des tensioactifs), la condition  $\tilde{\lambda} = \frac{b^2(-P_{,x}^0)^{3/2}}{\mu\gamma^{1/2}} \sim 10$  implique  $\mu \sim 45 Pa$ , ce qui donne l'ordre de grandeur du module de cisaillement des fluides adaptés pour cette étude. Par ailleurs, le nombre de Weissenberg (qui est le produit du temps de relaxation et du taux de cisaillement) vaut, dans ces mêmes conditions expérimentales :

$$We = \lambda \cdot u_{,y}^0 \sim \frac{P_{,x}^0 b}{8\mu} \sim 0,7.$$

Le fluide doit donc avoir les caractéristiques suivantes :

- suivre le modèle de Maxwell convecté supérieur jusqu'à des nombres de Weissenberg largement supérieurs à 1 ,
- avoir un module de cisaillement inférieur à une centaine de Pascal.

Parmi les fluides de Maxwell connus, seules les microémulsions connectées peuvent répondre à ce cahier des charges (les solutions de micelles géantes peuvent avoir des modules élastiques aussi faibles, mais leur comportement rhéologique s'éloigne alors nettement du modèle de Maxwell pour des nombres de Weissenberg de l'ordre de 0,5).

Nous avons donc utilisé des microémulsions connectées avec différentes concentrations en gouttelettes d'huile et différentes connectivités afin de faire varier le module de cisaillement et le temps de relaxation. Les caractéristiques de ces fluides sont données dans la tableau 2.1. Le choix de chaînes téléchéliques longues, de masse molaire 35 kg, fait que tous ces fluides suivent bien le modèle de Maxwell convecté supérieur jusqu'à des nombres de Weissenberg de l'ordre de 3 (voir la section 1.2.2 pour plus de détails).

### 2.4.2 Dispositif expérimental

La cellule de Hele-Shaw utilisée est constituée de deux plaques de verre (carrées, dimensions 15 cm  $\times$  15 cm  $\times$  5 mm) mises l'une sur l'autre, espacées de la distance  $b = 0,5$  mm (des espaceurs en Mylar permettent d'obtenir précisément cette distance). Les deux plaques sont serrées à l'aide de serre-joints. Un trou de diamètre  $2a = 6$  mm est percé au centre de la plaque du bas.

Un certain volume de microémulsion connectée est dans un premier temps injecté par ce trou. Il se forme une

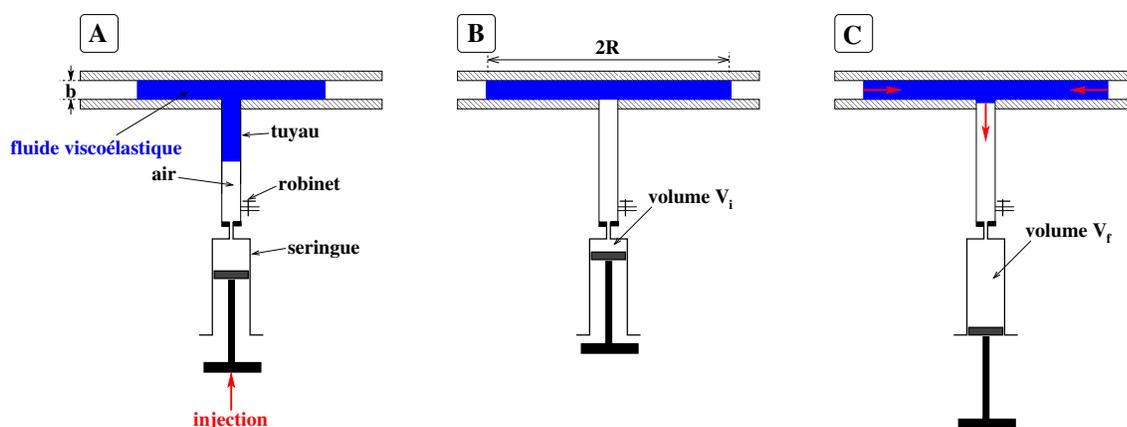


FIGURE 2.9 – Schémas du dispositif expérimental. Un volume précis de fluide viscoélastique est injecté dans une cellule de Hele-Shaw. L'injection se fait en poussant le fluide initialement placé dans le tuyau d'injection par de l'air (A). Une fois que le fluide se trouve entièrement dans la cellule, le robinet est ouvert de telle sorte que la pression dans le tuyau d'injection soit égale à la pression atmosphérique. Le piston de la seringue est déplacé de telle sorte que le volume d'air dans le tuyau et la seringue soit égal à  $V_i$  (B). Le robinet est ensuite fermé. Le piston de la seringue est alors soudainement tiré de telle sorte que le volume d'air dans le tuyau et la seringue soit  $V_f$ . Le fluide se trouve ainsi aspiré (C).

galette d'épaisseur  $b$  et de rayon  $R \simeq 10$  cm (Fig. 2.9, A). Le rayon dépend du volume injecté. Il est à chaque expérience précisément mesuré. Après avoir laissé le temps au fluide de relaxer les contraintes générées par l'injection (en pratique, le temps d'attente est d'une dizaine de minutes, soit un temps largement supérieur au temps de relaxation du fluide), une dépression est créée au niveau du trou d'injection, en pompant avec une seringue vide (de capacité 80 mL) reliée à ce trou par un tuyau (Fig. 2.9, B-C). Le volume de la seringue et du tuyau passe subitement de  $V_i$  à  $V_f$ . La dépression  $\Delta P$  créée au niveau du trou vaut

$$\Delta P = P_0 - P, \quad (2.42)$$

où  $P_0$  est la pression atmosphérique et  $P$  la pression à l'intérieur de la seringue. Initialement, la pression à l'intérieur de la seringue vaut  $P_0$ . D'après la loi des gaz parfaits, la pression finale vaut  $P_0 V_i / V_f$ . On en déduit que la dépression vaut :

$$\Delta P = P_0 \left( 1 - \frac{V_i}{V_f} \right). \quad (2.43)$$

Différentes valeurs de  $\Delta P$  sont obtenues en faisant varier le rapport  $V_i / V_f$ . La microémulsion connectée est ainsi aspirée par le trou : l'interface avec l'air se déplace radialement (Fig. 2.9, C). Une instabilité se

développe au niveau de l'interface, sous forme de motifs périodiques (Fig. 2.10,a). Nous avons filmé l'interface en vue de dessus. Dans la suite, nous nous intéressons aux premiers instants de la formation de cette instabilité, et nous comparons quantitativement les observations expérimentales avec les résultats théoriques que nous avons obtenus à la section 2.3. Nous avons réalisé ces expériences avec des fluides de différents modules de cisaillement, de différents temps de relaxation, et pour différentes dépressions  $\Delta P$ . L'épaisseur  $b$  de la cellule de Hele-Shaw et la valeur de tension de surface sont les mêmes dans toutes les expériences. La tension de surface d'une microémulsion nue (sans polymère) a été mesurée par la méthode de la goutte pendante. Nous avons mesuré  $\gamma \simeq 43$  mN/m, quelle que soit la fraction volumique en gouttelettes d'huile. Les faibles quantités de polymères ajoutés pour obtenir un fluide élastique à partir de la microémulsion nue n'ont pas d'effets attendus sur la valeur de la tension de surface [24].

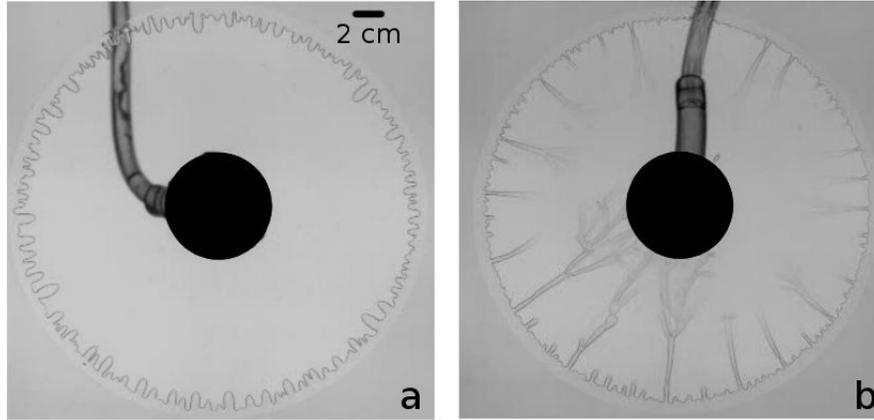


FIGURE 2.10 – Cellule de Hele-Shaw vue de dessus. La cellule a été remplie par son centre avec une microémulsion connectée, puis une dépression est créée, toujours au centre. Le fluide est aspiré. L'interface, initialement circulaire, se déstabilise. (a) Pour un temps de relaxation réduit  $\tilde{\lambda} = 5$ , nous observons des motifs périodiques répartis sur l'ensemble de la circonférence. (b) Pour un  $\tilde{\lambda} = 11,5$ , nous observons l'apparition soudaine de fractures.

### 2.4.3 Analyse des résultats

Afin de déterminer une longueur d'onde caractéristique associée à la formation de l'instabilité, nous avons divisé la longueur de la circonférence de la galette par le nombre de motifs pseudo-périodiques. La précision est de l'ordre du pourcent, dans la mesure où le nombre de périodes observables est supérieur à 100. Pour les pressions et les fluides mis en jeu, cette longueur d'onde est beaucoup plus petite que le rayon. Les effets venant de la géométrie radiale sont donc négligeables vis-à-vis de l'instabilité qui se produit au voisinage de l'interface.

Appelons  $k_{max}$  le nombre d'onde associé à la longueur d'onde mesurée.  $\tilde{k}_{max} = \sqrt{\frac{\gamma}{|\nabla P|}} k_{max}$  peut être calculé puisque la tension de surface est connue et le gradient de pression au niveau de l'interface vaut :

$$|\nabla P| = \frac{\Delta P}{R} \frac{1}{\ln\left(\frac{R}{a}\right)}. \quad (2.44)$$

Le facteur  $1/\ln\left(\frac{R}{a}\right)$  vient de la géométrie radiale de l'écoulement. De même, le temps de relaxation réduit est calculé, pour chaque fluide et chaque valeur de  $\Delta P$  (avec Eq. (2.6)) :

$$\tilde{\lambda} = \frac{b^2 |\nabla P|^{3/2}}{\mu \gamma^{1/2}}. \quad (2.45)$$

Les points expérimentaux sont tracés à la figure 2.11, où est représenté le nombre d'onde dominant adi-

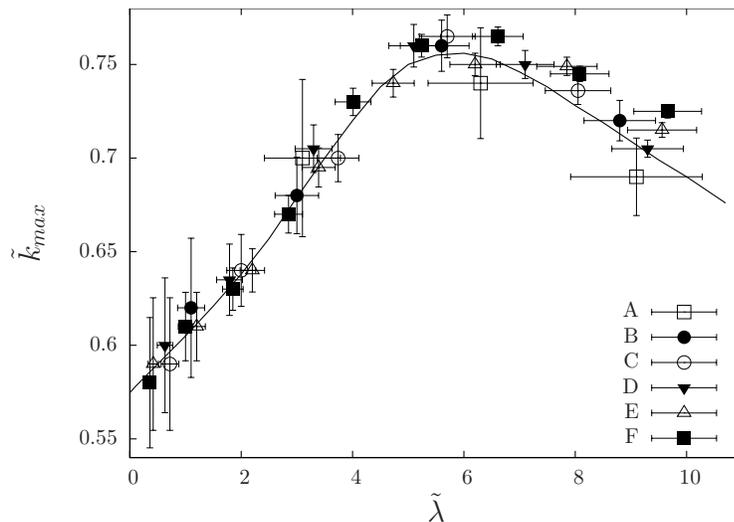


FIGURE 2.11 – Nombre d'onde adimensionné en fonction du temps de relaxation réduit. Les symboles correspondent aux mesures, la courbe au calcul théorique (courbe déjà tracée Fig. 2.7). Les caractéristiques rhéologiques des fluides utilisés (nommés de A à E) sont données à la table 2.1.

mensionné  $\tilde{k}_{max}$  en fonction du temps de relaxation réduit  $\tilde{\lambda}$ . Ces points ont été obtenus avec 6 fluides de Maxwell ayant des propriétés rhéologiques différentes (temps de relaxation et module de cisaillement, table 2.1). Plusieurs valeurs de  $\tilde{\lambda}$  apparaissent pour chacun des six fluides car le gradient de pression est changé d'un test à l'autre ( $\tilde{\lambda}$  est d'autant plus grand que la dépression est importante). Il apparaît que :

- (i) la valeur de  $\tilde{k}_{max}$  change d'une expérience à l'autre. Elle est proche de  $1/\sqrt{3}$  lorsque le gradient de pression est faible (ce qui est le nombre d'onde attendu pour un fluide newtonien), et supérieure à cette valeur pour les gradients de pression plus forts. Il y a donc bien une différence avec ce qui serait attendu si les fluides n'étaient pas viscoélastiques ;
- (ii) les points obtenus se regroupent autour d'une même courbe maîtresse : cela prouve la pertinence du choix des variables adimensionnées,  $\tilde{k}_{max}$  et  $\tilde{\lambda}$ , pour une description physique de cette situation expérimentale ;
- (iii) l'accord avec la courbe théorique (prédite à la section 2.3) est très satisfaisant (voir la figure 2.11). Ce bon accord montre que les effets de mouillage à la surface de la cellule peuvent être négligés [25, 26, 20, 27].
- (iv) chaque fois que le gradient de pression et le module de cisaillement sont tels que  $\tilde{\lambda} > 10 \pm 1$ , les motifs observés sont très différents de ceux obtenus pour des valeurs plus petites de ce paramètre, avec la propagation d'objets semblables à des fractures. La vitesse de propagation est alors plus de 2 ordres de grandeur supérieure à la vitesse d'avancée de l'instabilité précédente (voir la table 2.1 où est indiquée, pour chaque fluide testé, la valeur critique de  $\tilde{\lambda}$ ).

Ces résultats expérimentaux sont donc en accord avec les deux prédictions importantes que nous avons faites : les effets élastiques sur l'instabilité de Saffman-Taylor se traduisent par un décalage du vecteur d'onde le plus instable, et par un changement de régime lorsque  $\tilde{\lambda} \simeq 10$ .

La théorie linéaire ne peut prétendre prédire ce qui se passe lorsque  $\tilde{\lambda} > 10$ , puisque, comme il a déjà été signalé plus haut, elle conduit à un taux de croissance infini incompatible avec le développement perturbatif. Seule la prédiction d'un changement de régime a un sens. Pour décrire l'instabilité dans ce cas, il faut tenir compte de termes d'ordres supérieurs qui tendent nécessairement vers une modération du taux de croissance de l'instabilité.

	Fluid A	Fluid B	Fluid C	Fluid D	Fluid E	Fluid F
$\phi(\%); r$	2 ; 4	5 ; 2,8	14 ; 2,1	2 ; 5	3 ; 4	14 ; 2,3
$mu$ (Pa) ; $\lambda$ (s)	4,2 ; 0,2	13 ; 0,3	19,5 ; 0,16	22 ; 0,6	33 ; 0,6	39 ; 0,24
$\tilde{\lambda}_c^{exp}$	$10,5 \pm 1$	$10,3 \pm 0,7$	$9,4 \pm 0,6$	$10,0 \pm 0,6$	$9,3 \pm 0,4$	$9,7 \pm 0,4$

TABLE 2.1 – Lignes 2 et 3 : Composition et paramètres rhéologiques linéaires des fluides utilisés dans les expériences.  $r$  et  $\phi$  sont respectivement la connectivité et la fraction volumique de l’huile de la microémulsion connectée. Ligne 3 : valeur expérimentale du temps de relaxation réduit  $\tilde{\lambda}$  critique pour lequel le changement de régime de l’instabilité est observé (voir la figure 2.10).

Les expériences donnent des informations sur ce second régime. Les microémulsions connectées cessent d’être décrites par le modèle de Maxwell lorsque des fractures apparaissent au sein du fluide. Au seuil d’apparition des ces fractures est associé un taux de cisaillement critique. Nous en déduisons que, lorsque les fractures sont observées dans les expériences (i.e., lorsque  $\tilde{\lambda} > 10,2$ ), ce taux de cisaillement critique est atteint. Ceci contraste avec les cas où  $\tilde{\lambda} < 10,2$  où le taux de cisaillement est systématiquement largement (au moins d’un facteur 3) inférieur au taux critique. Nous en concluons que le taux de croissance de l’instabilité augmente d’une valeur finie lors du passage d’une situation où  $\tilde{\lambda} < 10,2$  à une situation où  $\tilde{\lambda} > 10,2$ . Il existe donc un saut du taux de croissance de l’instabilité pour  $\tilde{\lambda} = 10,2$ .

## 2.5 Conclusion et Perspectives

Nous avons introduit de l’élasticité dans une instabilité hydrodynamique.

Nous avons montré que l’élasticité des fluides viscoélastiques influe sur l’instabilité de Saffman-Taylor : la longueur d’onde diminue et le taux de croissance de l’instabilité « explose » pour une certaine valeur du gradient de pression (valeur qui correspond à  $\tilde{\lambda} = 10,2$ ). Cette « explosion » se traduit par la propagation de fractures lorsque le fluide est une microémulsion connectée.

Ces résultats ont été obtenus pour des fluides de Maxwell. En pratique, les fluides complexes sont souvent plus compliqués, et il serait intéressant de généraliser ces conclusions. Par exemple, pour la plupart des fluides élastiques (fondus de polymères, verres, etc.), le spectre des temps de relaxation à une largeur finie : il existe une distribution continue des temps de relaxation. Une situation simple qui devrait permettre de comprendre l’effet d’une largeur finie du spectre des temps de relaxation est celle où le spectre ne comporte que deux temps de relaxation (voir Fig. 2.12). Dans ce cas, quel doit être le paramètre de contrôle de l’instabilité ? Il y a en effet plusieurs manières possibles de définir  $\tilde{\lambda}$ . Dans  $\tilde{\lambda} = \frac{b^2 |P_{,x}^0|^{3/2}}{\mu \gamma^{1/2}}$ , faut-il prendre pour  $\mu$  le module de cisaillement instantané (total), ou alors uniquement le module associé au temps de relaxation le plus long ? Faut-il définir un paramètre de contrôle supplémentaire ? Pour répondre à ces questions, une nouvelle étude théorique et expérimentale est nécessaire. Expérimentalement, un fluide de Maxwell comportant deux temps de relaxation peut être obtenu avec une microémulsion connectée par des types différents de polymères téléchéliques [28], en jouant par exemple sur la taille des extrémités hydrophobes.

Certains fluides viscoélastiques, comme les solutions de micelles géantes, suivent le modèle de Maxwell aux faibles nombres de Weissenberg, pour s’en écarter lorsqu’il augmente. Ils s’en écarterent car leur structure, sous l’effet d’un écoulement, change. Ceci conduit la plupart du temps à une diminution de la viscosité du fluide. Le rôle d’une rhéofluidification - ou d’un rhéoépaississement - sur l’instabilité de Saffman-taylor est maintenant bien compris [29, 1]. Cependant, aucune étude n’a traité le cas où ce comportement est associé à de la viscoélasticité. L’augmentation rapide du taux de croissance de l’instabilité due aux effets élastiques,

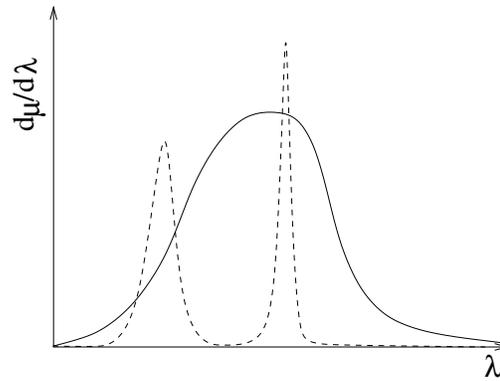


FIGURE 2.12 – Exemples de spectres des temps de relaxation de fluides viscoélastiques. La courbe continue représente un spectre de largeur finie. Les pointillés représentent un spectre avec deux temps principaux de relaxation. Le module de cisaillement associé à chacun de ces temps est proportionnel à l'aire sous chacun des pics.

mise en évidence plus haut, laisse penser que le couplage entre élasticité et comportement rhéofluidifiant (ou rhéoépaississant) aura des conséquences importantes.

Enfin, une autre question fondamentale qui se pose porte sur l'effet d'un gradient de pression périodique. Nous n'avons trouvé aucun effet particulier, à l'ordre linéaire, lorsque les fluides sont newtoniens. L'introduction d'un temps caractéristique supplémentaire, propre au fluide, est susceptible d'être associé à un phénomène de résonance - ou d'antirésonance - lorsque l'excitation contient une composante sinusoïdale, avec en ligne de mire la possibilité de stabiliser une interface habituellement instable.

## Bibliographie

- [1] S. Mora and M. Manna. Saffman-Taylor instability for generalized newtonian fluids. *Phys. Rev. E*, 80 :106308, 2009.
- [2] S. Mora and M. Manna. Saffman-Taylor instability of viscoelastic fluids : from viscous fingering to elastic fractures. *Phys. Rev. E*, 81 :026305, 2010.
- [3] S. Mora and M. Manna. From viscous fingering to elastic instabilities. *Soumis à Journal of non Newtonian fluid mechanics*, 2011.
- [4] S. Hill. Channelling in packed columns. *Chem. Eng. Sci.*, 1 :247–253, 1959.
- [5] P.G. Saffman and Taylor G.I. The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous fluid. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 245 :312–329, 1958.
- [6] R.L. Chuoke, P. Van Meurs, and C Van der Pol. The instability of slow immiscible viscous liquid-liquid displacements in permeable media. *Petrol. Trans. AIME*, 216 :188–194, 1959.
- [7] D. Bensimon, L.P. Kadanoff, S. Liang, B.I. Shraiman, and C. Tang. Viscous flows in two dimensions. *Reviews of Modern Physics*, 58 :977–999, 1986.
- [8] G.K Batchelor, H.K Moffatt, and M.G. Worster. *Perspectives in Fluid Dynamics*. Cambridge University Press, 2000.
- [9] J. Nittmann, G. Daccord, and H.E. Stanley. Fractal viscous fingering : Quantitative characterization of a fluid instability phenomenon. *Nature*, 314 :141–144, 1985.

- [10] H. Van Damme, H Obrecht, P. Levitz, L Gatineau, and C. Laroche. Fractal viscous fingering in clay slurries. *Nature*, 320 :731–733, 1986.
- [11] PG. de Gennes. Time effects in viscoelastic fingering. *Europhys. Lett.*, 3 :195–197, 1987.
- [12] S.D.R. Wilson. The Taylor-Saffman problem for a non-Newtonian liquid. *J. Fluid. Mech.*, 220 :413–425, 1990.
- [13] H. Zhao and J.V. Maher. Associating-polymer effects in a Hele-Shaw experiment. *Phys. Rev. E*, 47 :4278, 1993.
- [14] C. Corvera-Poiré and M Ben Amar. Pushing a non-newtonian fluid in a hele-shaw cell : from fingers to needles. *Physics of fluids*, 11 :1757, 1999.
- [15] M. Ben Amar. Viscous fingering : A singularity in laplacian grown models. *Phys. Rev. E*, 51 :R3819–R3822, 1995.
- [16] A. Levermann and I Procaccia. Bi-Laplacian Growth Patterns in Disordered Media. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :234501, 2002.
- [17] J. Nase, A. Lindner, and C Creton. Pattern formation during deformation of a confined viscoelastic layer : From a viscous liquid to a soft elastic solid. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :074503, 2008.
- [18] G. Astarita and G. Marrucci. *Principles of Non-Newtonian Fluid Mechanics*. McGraw-Hill, 1974.
- [19] C.W. Macosko. *Rheology : principles , measurements and applications*. Wiley-VCH, New York, 1994.
- [20] T. Maxworthy. Experimental study of interface instability in a hele-shaw cell. *Phys. Rev. A*, 39 :5863–5866, 1989.
- [21] D.D. Joseph. *Fluid Dynamics of Viscoelastic Liquids*. Springer-Verlag, New York, 1990.
- [22] C.W. Park and G.M. Homsy. Two-phase displacement in hele shaw cells : theory. *Journal of Fluid Mechanics*, 139 :291–308, 1984.
- [23] L Paterson. Fingering with miscible fluids in a hele shaw cell. *Physics of Fluids*, 28 :26–30, 1985.
- [24] H. Tabuteau, S. Mora, G. Porte, M. Abkarian, and C. Ligoure. Microscopic mechanisms of the brittleness of viscoelastic fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :155501–155504, 2009.
- [25] P. Tabeling and A. Libchaber. Film draining and the Saffman-Taylor problem. *Phys. Rev. A*, 3 :794–796, 1986.
- [26] P.G. Saffman. Viscous Fingering in Hele-Shaw cells. *J. Fluid Mech.*, 173 :73–94, 1986.
- [27] M.W. DiFrancesco and J.V. Maher. Hele-Shaw scaling properties of low-contrast Saffman-Taylor flows. *Phys. Rev. A*, 40 :295–304, 1989.
- [28] C. Rufier, A. Collet, M. Viguir, J. Oberdisse, and S. Mora. Asymmetric end-capped poly(ethylene oxide). synthesis and rheological behavior in aqueous solution. *Macromolecules*, 41 :5854–5862, 2008.
- [29] P Fast, L Kondic, M.J. Shelley, and P Palffy-Muhoray. Pattern formation in non-Newtonian Hele-Shaw flow. *Phys. Fluids*, 13 :1191–1212, 2001.

## Chapitre 3

# Instabilité de Rayleigh-Plateau élastique

### Résumé :

Nous<sup>1</sup> montrons qu'un filament élastique peut être instable vis-à-vis de l'instabilité de Plateau : une modulation longitudinale du rayon diminue la surface d'un cylindre, conduisant à une déstabilisation capillaire. Les forces élastiques s'y opposent. De cette compétition naît un seuil d'instabilité que nous avons observé expérimentalement. La valeur de ce seuil est en accord avec la théorie que nous avons développée.

### 3.1 Introduction

La forme que prend un volume donné de liquide résulte, au moins en partie, de sa tendance à réduire la surface afin de diminuer l'énergie capillaire. Le cylindre n'est pas la forme de surface minimale. Le minimum absolu est pour la sphère. Le cylindre n'est pas non plus un minimum local puisqu'une modulation longitudinale du rayon conduit à une diminution de la surface. L'instabilité de Rayleigh-Plateau en est une conséquence directe [2, 3, 4, 5]. Considérons une telle modulation (Fig. 3.1). L'origine de cette instabilité peut être vue comme une conséquence de la loi de Laplace : la pression à l'intérieur du cylindre vaut :

$$P = P_0 + \gamma \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right), \quad (3.1)$$

où  $\gamma$  est la tension de surface,  $P_0$  est la pression extérieure,  $R_1$  et  $R_2$  sont les rayons de courbures longitudinale et azimutale respectivement (Fig. 3.1).

- $R_2$  est plus grand au voisinage d'un maximum du rayon que d'un minimum. Le rayon azimutal provoque donc une augmentation relative de la pression interne au niveau d'un minimum du rayon, ce qui tend à chasser le liquide de cette zone. La courbure azimutale a donc un effet déstabilisant.
- $R_1$  est positif au voisinage d'un maximum, et négatif au voisinage d'un minimum du rayon. La courbure longitudinale entraîne donc une diminution relative de la pression interne au niveau d'un minimum. Cet effet stabilisant s'oppose à celui de la courbure azimutale.

Contrairement à la courbure azimutale, la courbure longitudinale dépend de la longueur d'onde de la perturbation : elle est d'autant plus faible que la longueur d'onde est grande, et tend vers 0 lorsque la longueur d'onde tend vers l'infini. On en déduit que l'effet déstabilisant est dominant pour les grandes longueurs d'onde. On peut montrer que l'effet déstabilisant l'emporte lorsque  $k\rho_0 < 1$ , où  $k$  est le vecteur d'onde de la perturbation et  $\rho_0$  le rayon du cylindre. Notons que n'importe quel cylindre liquide, quel que soit le diamètre, est toujours instable vis-à-vis des perturbations de grandes longueurs d'onde.

La tension de surface existe aussi bien pour un solide que pour un liquide, mais ses effets sur les solides sont la plupart du temps inobservables. La dimension du rapport  $l_c = \gamma/\mu$ , où  $\mu$  est le module de cisaillement

---

1. Expériences réalisées avec Ty Phou et Jean-Marc Fromental (L2C, Montpellier), théorie effectuée en collaboration avec Yves Pomeau (Université d'Arizona) et Len Pismen (Israel Institute of Technology). Nous avons publié la référence [1] sur ce sujet.

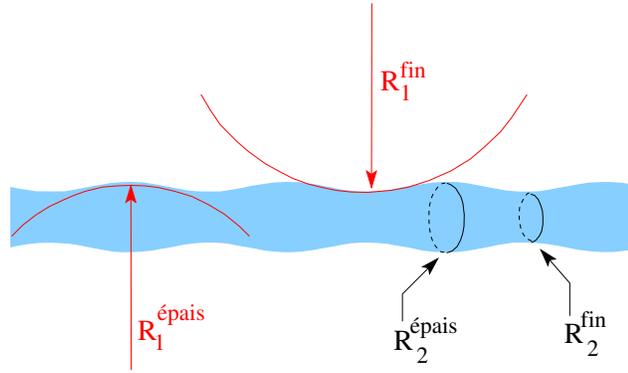


FIGURE 3.1 – Modulation longitudinale de la surface d'un cylindre.  $R_1$  est le rayon de courbure longitudinale,  $R_2$  est le rayon de courbure azimutale.

(et  $\gamma$  est la tension de surface) est une longueur. Cette longueur, appelée ici *longueur élasto-capillaire*, définit la limite entre deux régimes : sur des échelles de longueur plus grandes que  $l_c$ , l'énergie élastique domine l'énergie capillaire. Le contraire se produit sur des échelles de longueurs inférieures à  $l_c$ .

Cette longueur est microscopique pour la plupart des solides. En effet, puisque tension de surface et module de cisaillement viennent d'interactions microscopiques, leur rapport est de l'ordre de grandeur de la portée de ces interactions, i.e., une fraction de nanomètres.  $l_c$  n'est donc pas une grandeur pertinente à l'échelle de la mécanique des milieux continus : les effets capillaires sont alors absents.

Pendant, pour des solides élastiques très mous, comme certains élastomères, ou certains gels,  $l_c$  est macroscopique. En effet, pour des systèmes complexes composés de grandes molécules, tension de surface et module de cisaillement sont régis par des interactions différentes. Le module de cisaillement dépend essentiellement des interactions entre ces molécules, interactions qui se font sur de grandes distances (par exemple, la distance qui sépare deux points de réticulation, distance qui peut être de l'ordre de grandeur de la taille de la macro-molécule), alors que la tension de surface est pilotée par la densité de monomères dans le cas d'un élastomère, et par le solvant dans le cas d'un gel. La tension de surface est, pour tous ces systèmes, de l'ordre de quelques dizaines de mN/m. Pour un gel, le module de cisaillement peut descendre jusqu'à quelques dizaines de Pa. La longueur élasto-capillaire est alors de l'ordre du millimètre, ce qui est bien au dessus des tailles microscopiques !

Le mécanisme déstabilisant de l'instabilité de Rayleigh-Plateau pourrait donc se manifester pour un cylindre élastique constitué d'un tel matériau. Dans ce cas, au gain d'énergie généré par une modulation longitudinale du rayon s'ajoute un coup en énergie élastique, d'où une compétition entre effets élastiques et capillaires. La seule échelle de longueur géométrique du cylindre (infiniment long) est le rayon ( $\rho_0$ ). L'autre échelle de longueur est la longueur élasto-capillaire  $l_c$ . D'après la discussion qui précède, les effets élastiques (stabilisants) domineront lorsque  $\rho_0 \gg l_c$ , alors que les effets déstabilisants seront importants lorsque  $\rho_0 \ll l_c$ . On peut donc s'attendre à ce que l'introduction de l'élasticité enrichisse la physique de l'instabilité de Plateau, en particulier par l'existence d'un seuil.

## 3.2 Approche théorique

Supposons qu'un cylindre élastique (incompressible, de module de cisaillement  $\mu$  et de rayon  $\rho_0$ ) soit transféré d'un environnement à un autre, de telle sorte que la tension de surface passe de 0 à  $\gamma$ . Le cylindre se déforme alors. Notons  $r = \rho_0 + \zeta(r)$  l'équation de la surface après déformation. Le but est ici de trouver l'expression de  $\zeta(r)$ .  $\zeta(r)$  est tel que l'énergie totale (capillaire et élastique) soit minimale.

Notons  $(r, \theta, z)$  les coordonnées cylindriques d'un point dans l'état non déformé. Après la déformation (axisymétrique) les coordonnées de ce point sont notées  $(R, \theta, Z)$ . Notons  $u_r$  et  $u_z$  les composantes radiale et

longitudinale du champ des déplacements. Alors :  $R = r + u_r(r, z)$  et  $Z = z + u_z(r, z)$ .

Nous supposons que la longueur totale du cylindre ne change pas au cours de la déformation. Cela correspond à la situation expérimentale de la section 3.3, où la distance entre les deux extrémités du cylindre (supposée beaucoup plus longue que le rayon) est maintenue constante, empêchant le cylindre de se contracter. Sous cette hypothèse, un développement perturbatif est pertinent pour modéliser l'instabilité à l'ordre linéaire.

Les composantes du tenseur des déformations linéarisé ont pour expression, en coordonnées cylindriques et pour une déformation invariante par rotation [6],

$$u_{rr} = u_{r,r} ; \quad u_{\phi\phi} = \frac{u_r}{r} ; \quad u_{zz} = u_{z,z} ; \quad u_{rz} = \frac{1}{2}(u_{r,z} + u_{z,r}) ; \quad u_{\phi z} = 0 ; \quad u_{r\phi} = 0.$$

La condition d'incompressibilité  $u_{rr} + r_{\phi\phi} + u_{zz} = 0$  impose :

$$u_{r,r} + \frac{u_r}{r} + u_{z,z} = 0. \quad (3.2)$$

La densité d'énergie élastique  $\mathcal{W}$ , pour un matériau hookéen incompressible, est égale au module de cisaillement multiplié par la somme des carrés des composantes du tenseur des déformations :

$$\mathcal{W} = \mu \left( u_{r,r}^2 + \frac{u_r^2}{r^2} + u_{z,z}^2 + \frac{1}{2}(u_{r,z} + u_{z,r})^2 \right), \quad (3.3)$$

L'énergie élastique totale vaut :

$$\mathcal{E}_{elast} = 2\pi \int dz \int_0^{\rho_0} \mathcal{W} \cdot r dr. \quad (3.4)$$

L'énergie de surface vaut :

$$\mathcal{E}_{surf} = 2\pi\gamma \int dz \zeta(z) \sqrt{1 + \zeta_{,z}^2}. \quad (3.5)$$

Pour de petits déplacements,  $\zeta(z) = u_r(\rho, z)$ . La minimisation de l'énergie totale  $\mathcal{E}_{elast} + \mathcal{E}_{surf}$  doit tenir compte de la condition d'incompressibilité (3.2). Introduisons le multiplicateur de Lagrange  $p(r, z)$  et cherchons les conditions sur  $u_r$  et  $u_z$  pour que

$$\mathcal{F} = \int dz \int_0^{\rho_0} \overbrace{\left[ \mathcal{W} - p \left( u_{r,r} + \frac{u_r}{r} + u_{z,z} \right) \right]}^{\equiv f(r, z, u_r, u_z, u_{r,r}, u_{r,z}, u_{z,r}, u_{z,z})} r dr + \gamma \int dz \zeta(z) \sqrt{1 + \zeta_{,z}^2} \quad (3.6)$$

soit stationnaire. Nous détaillons ici cette minimisation car il s'agit de l'essence même de cette théorie. Minimiser (en une seule fois) l'énergie totale, i.e., la somme de l'énergie surfacique et de l'énergie volumique, est nécessaire si l'on veut tenir compte d'un éventuel couplage entre effets élastique et capillaire.

Soit la perturbation infinitésimale  $\delta u_r(r, z)$  et  $\delta u_z(r, z)$  du champ de déformations.  $\delta u_r(r, z)$  et  $\delta u_z(r, z)$  peuvent varier indépendamment. Afin de ne pas trop alourdir l'exposé, nous ne détaillerons que les effets de  $\delta u_r(r, z)$ . Le même raisonnement s'applique pour le déplacement  $\delta u_z(r, z)$ . La variation de  $\mathcal{F}$  est :

$$\begin{aligned} \delta \mathcal{F} = & \int dz \int_0^{\rho_0} dr \left( \frac{\partial f}{\partial u_r} \delta u_r + \frac{\partial f}{\partial u_{r,r}} \delta u_{r,r} + \frac{\partial f}{\partial u_{r,z}} \delta u_{r,z} \right) \\ & + \gamma \int dz \left[ \frac{\partial}{\partial \zeta} \left( \zeta \sqrt{1 + \zeta_{,z}^2} \right) \delta \zeta + \frac{\partial}{\partial \zeta_{,z}} \left( \zeta \sqrt{1 + \zeta_{,z}^2} \right) \delta \zeta_{,z} \right], \end{aligned} \quad (3.7)$$

où la fonction  $f$  est définie par (3.6). En intégrant par parties, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \delta \mathcal{F} = & \int dz \int_0^{\rho_0} dr \left( \frac{\partial f}{\partial u_r} - \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial f}{\partial u_{r,r}} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial f}{\partial u_{r,z}} \right) \right) \delta u_r + \int dz \left[ \frac{\partial f}{\partial u_{r,r}} \delta u_r \right]_0^{\rho_0} \\ & + \gamma \int dz \left\{ \sqrt{1 + \zeta_{,z}^2} + \frac{\partial}{\partial z} \frac{\zeta \zeta_{,z}}{\sqrt{1 + \zeta_{,z}^2}} \right\} \delta \zeta. \end{aligned} \quad (3.8)$$

Puisque  $\zeta(z) = u_r(\rho_0, z)$  :

$$\begin{aligned} \delta\mathcal{F} &= \int dz \int_0^{\rho_0} dr \left( \frac{\partial f}{\partial u_r} - \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial f}{\partial u_{r,r}} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial f}{\partial u_{r,z}} \right) \right) \delta u_r \\ &+ \int dz \left[ \frac{\partial f}{\partial \zeta_r} + \gamma \left( \sqrt{1 + \zeta_z^2} + \frac{\partial}{\partial z} \frac{\zeta \zeta_z}{\sqrt{1 + \zeta_z^2}} \right) \right] \delta \zeta. \end{aligned} \quad (3.9)$$

En intégrant d'abord sur  $r$ , puis sur  $z$ , on montre qu'il faut que chacun des deux intégrandes soit nulle pour que  $\delta\mathcal{F}$  soit nul quelle que soit la fonction  $\delta u_r(r, z)$  :

$$\begin{cases} \frac{\partial f}{\partial u_r} - \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial f}{\partial u_{r,r}} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial f}{\partial u_{r,z}} \right) = 0 \text{ pour tout } z \text{ et tout } r < \rho_0 \\ \frac{\partial f}{\partial u_{r,r}} + \gamma \left( \sqrt{1 + u_{r,z}^2} + \frac{\partial}{\partial z} \frac{u_r u_{r,z}}{\sqrt{1 + u_{r,z}^2}} \right) = 0 \text{ en } r = \rho_0 \text{ et pour tout } z. \end{cases} \quad (3.10)$$

La première équation d'Euler-Lagrange est une équation en volume. La seconde, où interviennent ensemble élasticité et capillarité, constitue une condition aux limites au niveau de l'interface du cylindre. On obtient deux autres équations d'Euler-Lagrange (en volume et pour la surface) en considérant  $\delta u_z$ . Compte-tenu de l'expression de la fonction  $f$ , on trouve finalement :

$$\begin{cases} \mu \left( -2 \frac{u_r}{r^2} + 2 \frac{u_{r,r}}{r} + 2u_{r,rr} + u_{r,zz} + u_{z,rz} \right) - p_{,r} = 0, \\ \mu \left( 2u_{z,zz} + \frac{u_{r,z}}{r} + \frac{u_{z,r}}{r} + u_{r,zr} + u_{z,rr} \right) - p_{,z} = 0, \end{cases} \quad (3.11)$$

et pour  $r = \rho_0$  :

$$\begin{cases} \frac{\gamma}{r} \left[ \sqrt{1 + u_{r,z}^2} - \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{(\rho_0 + u_r) u_{r,z}}{\sqrt{1 + u_{r,z}^2}} \right) \right] + 2\mu u_{r,r} - p = 0, \\ u_{r,z} + u_{z,r} = 0. \end{cases} \quad (3.12)$$

Les équations (3.11), (3.12), et la condition d'incompressibilité (3.2) permettent de résoudre le problème de stabilité qui nous intéresse. Cherchons des solutions sinusoïdales de nombre d'onde  $k$  :

$$\begin{cases} u_r = \epsilon v(r) e^{ikz}, \\ u_z = \epsilon w(r) e^{ikz}, \\ p = \epsilon p(r) e^{ikz}. \end{cases} \quad (3.13)$$

La condition d'incompressibilité Eq. (3.2) s'écrit :

$$w = \frac{i}{k} \left( v_{,r} + \frac{v}{r} \right), \quad (3.14)$$

et les équations (3.11) deviennent :

$$\begin{cases} \mu \left( -\frac{2v}{r^2} + \frac{2v_{,r}}{r} + 2v_{,rr} - k^2 v + ikw_{,r} \right) - p_{,r} = 0, \\ \mu \left( -2k^2 w + \frac{ikv}{r} + \frac{w_{,r}}{r} + ikv_{,r} + w_{,rr} \right) - ikp = 0. \end{cases} \quad (3.15)$$

(3.14) et (3.15) constituent un système de trois équations à trois inconnues ( $v$ ,  $w$ , et  $p$ ). En éliminant  $p$  et  $w$  et en définissant l'opérateur  $\mathcal{L}$  par :

$$\mathcal{L} = \frac{d^2}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d}{dr} - \frac{1}{r^2},$$

on trouve :

$$(\mathcal{L} - k^2)^2 v = 0. \quad (3.16)$$

L'espace des solutions (non divergentes en  $r = 0$ ) de l'équation différentielle (3.16) est de dimension 2. Deux solutions indépendantes sont [1] :  $v_a(r) = I_1(kr)$  et

$$v_b = I_1(kr) \int_{\rho_0}^r k^2 r \cdot K_1(kr) \cdot I_1(kr) dr - K_1(kr) \int_{\rho_0}^r k^2 r \cdot I_1^2(kr) dr, \quad (3.17)$$

où  $I_1$  et  $K_1$  sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre 1, respectivement de première et seconde espèce. La solution générale de l'équation 3.16 est  $v(r) = \alpha v_a(r) + \beta v_b(r)$ . En développant cette expression dans les conditions aux limites (3.12) nous obtenons le système homogène de deux équations à deux inconnues :

$$\begin{cases} \left[ -\frac{\gamma}{\mu\rho_0}(1 - k^2)v_a(r) + 2\frac{dv_a}{dr}(r) \right] \alpha + \left[ v_a(r) + \frac{dv_a}{dr}(r) \right] \beta = 0 \\ 2\alpha v_a(r) + \beta v_b(r) = 0. \end{cases} \quad (3.18)$$

La condition pour que la perturbation soit non nulle ( $\alpha$  et  $\beta \neq 0$ ) est (en utilisant  $I_1'(x) = I_0 - \frac{1}{x}I_1(x)$ ) :

$$\gamma = \gamma_c \equiv \frac{2\mu\rho_0}{1 - \rho_0^2 k^2} \left( 2\rho_0 k \frac{I_0(\rho_0 k)}{I_1(\rho_0 k)} - 1 \right). \quad (3.19)$$

$\gamma_c(k)$  est la tension de surface pour laquelle le mode de déformation de vecteur d'onde  $k$  est neutre, i.e., son énergie ne dépend pas de son amplitude : l'état perturbé a la même énergie que le cylindre de base. Si la tension de surface est inférieure à  $\gamma_c(k)$  alors le mode de nombre d'onde  $k$  est stable. Si  $\gamma > \gamma_c(k)$ , il est instable.

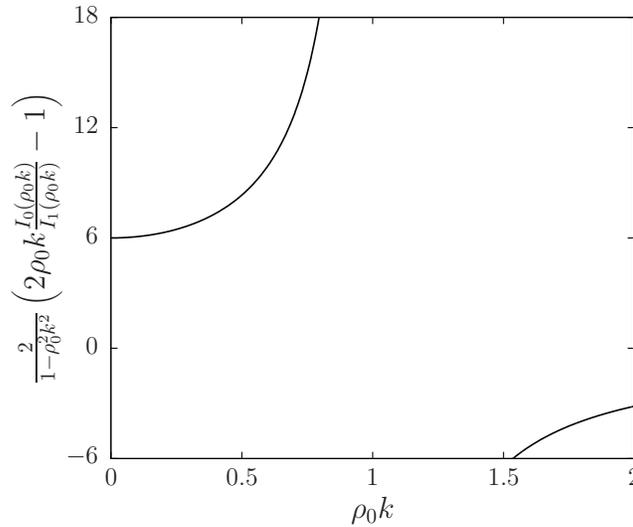


FIGURE 3.2 –  $\frac{\gamma_c}{\mu\rho_0}$  en fonction de  $\rho_0 k$ . Cette courbe permet, pour chaque nombre  $k$ , de connaître la valeur de la tension de surface critique au delà de laquelle le cylindre est instable. Le minimum positif est pour  $k = 0$ , ce qui signifie que l'instabilité correspondant à la tension de surface la plus basse se développe avec une longueur d'onde infinie.

$\frac{\gamma_c}{\mu\rho_0}$  est tracé en fonction de  $\rho_0 k$  à la figure 3.2. Nous constatons que le premier mode instable est  $k = 0$ . La tension de surface est alors  $\gamma_c(0) = 6\mu\rho_0$ . Un cylindre élastique est donc instable dès que :

$$\gamma > 6\mu\rho_0. \quad (3.20)$$

Contrairement à l'instabilité de Rayleigh-Plateau d'un liquide, il existe un seuil d'instabilité. La condition (3.20) peut aussi s'écrire :

$$\rho_0 < \frac{1}{6} \frac{\gamma}{\mu}. \quad (3.21)$$

Un cylindre dont le diamètre est inférieur au tiers de la longueur élasto-capillaire est instable. Sinon, il est stable. Comme attendu, le rayon critique est d'autant plus grand que le module de cisaillement est faible (i.e., le matériau est mou). Notons que la valeur du seuil (3.20), calculée ici de manière exacte, a été déterminée sous la forme d'une approximation dans la référence [7].

### 3.3 Expériences

Nous avons réalisé des cylindres de gel d'agar de différents rayons et différentes concentrations (entre 0,16% et 0,5% en masse) pour faire varier les modules élastiques. Les cylindres d'agar sont obtenus en injectant une solution liquide d'agar (à 90 degrés) dans un moule réalisé en polystyrène. Ces moules sont fabriqués à partir de deux blocs parallélépipédiques en polystyrène. Une face de chaque bloc est chauffée juste au dessus de la température de transition vitreuse du polystyrène, puis ces deux faces sont plaquées l'une sur l'autre après avoir placé entre elles un fil rectiligne de cuivre de diamètre donné. Après refroidissement, ce fil est extrait. Nous obtenons ainsi un bloc de polystyrène creusé d'un cylindre de diamètre voulu. La rugosité de surface est inférieure à 4 microns. Le moule est ensuite porté à la température de 90 degrés et la solution d'agar est injectée. Un cadre rigide joint les deux extrémités par l'intermédiaire d'un excès de solution d'agar (Fig. 3.3). L'ensemble est alors laissé à température ambiante durant cinq heures. Le moule est alors dissout par immersion dans du toluène. La dissolution prend 3 minutes environ (Fig. 3.4). On obtient, après dissolution, un filament de gel d'agar immergé dans du toluène. Le cadre l'empêche de se replier sur lui-même. La longueur du filament est d'environ 2 cm, son rayon dépend de la taille du moule, entre 150 et 260 microns.

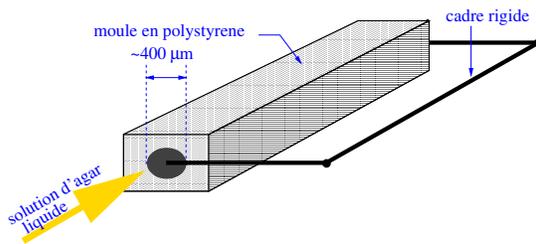


FIGURE 3.3 – Moule servant à la fabrication de cylindres de gel d'agar.

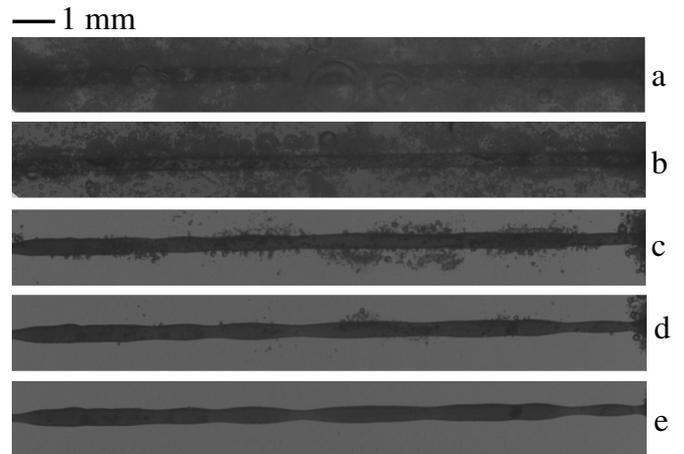


FIGURE 3.4 – Libération d'un cylindre d'agar lors de la dissolution du moule dans du toluène. 1 s (a), 10 s (b), 60 s (c), 120 s (d) et 180 s (e) après immersion dans le toluène. Le diamètre du moule est de 300 µm, le module de cisaillement du gel vaut 27 Pa (0,18 % d'agar en masse).

Une instabilité de surface apparaît, à la fin de la dissolution, pour certaines valeurs du rayon du cylindre et du module de cisaillement du gel (Fig. 3.4). Les filaments de grandes concentrations d'agar et/ou grands diamètres restent cylindriques. Pour les plus faibles concentrations et les plus petits diamètres, les filaments

se cassent en plusieurs morceaux au cours de la dissolution. Pour des rayons et des concentrations intermédiaires, la surface présente des ondulations statiques et permanentes (Fig. 3.5,(b),(c),(d)).

Afin de prouver l'existence d'un seuil d'instabilité, nous avons tracé l'amplitude en fonction du module de cisaillement (pour un rayon et une tension de surface donnés). La précision de la mesure des amplitudes des modulations est de l'ordre de 15 microns. Nous avons ensuite ajusté sur ces données une fonction en loi de puissance :

$$f(\mu) = \alpha \cdot (\mu - \mu_c)^\beta, \tag{3.22}$$

où  $\beta$ ,  $\mu_c$  et  $\alpha$  sont les paramètres ajustables (Fig. 3.6). Ceci nous a permis de déterminer avec certitude si un cylindre de module de cisaillement  $\mu$  est dans une configuration stable ou instable. Nous avons fait ces ajustements pour des données correspondant à des rayons différents. La figure 3.7 fait le bilan pour les différents cylindres testés. Le plan  $(\mu, \rho_0)$  est divisé en deux zones, l'une correspond aux cylindres stables, l'autre aux cylindres instables. Notons que dans ces expériences, la tension de surface reste constante. L'eau étant le solvant des gels, cette tension de surface est identique à la tension de surface entre l'eau et le toluène ( $\gamma = 36,5 \text{ mN/m}$ ).

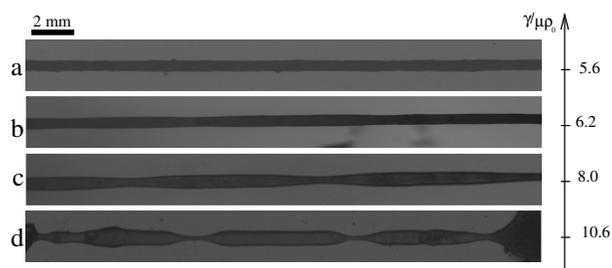


FIGURE 3.5 – Forme d'équilibre des cylindres d'agar immergés dans du toluène pour différentes valeurs du module de cisaillement (entre 12 et 27 Pa). Le rayon vaut  $\rho_0 = 240 \mu\text{m}$ . L'instabilité de surface est observée lorsque  $\gamma / (\mu \rho_0) > 6,2$ .

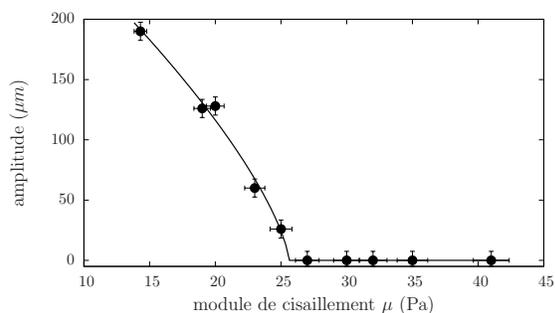


FIGURE 3.6 – Amplitude de la modulation en fonction du module de cisaillement pour une même valeur de rayon du cylindre ( $\rho_0 = 240 \mu\text{m}$ ). Le courbe représente le meilleur ajustement à partir de l'expression (3.22) :  $\mu_c = 25,6 \text{ Pa}$ ,  $\alpha = 34,1 \mu\text{m}$  et  $\beta = 0,71$ .

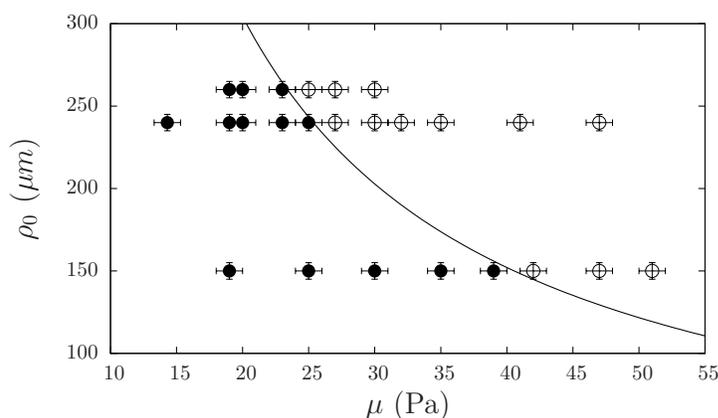


FIGURE 3.7 – Les symboles vides correspondent à des cylindres stables ; les symboles pleins à des cylindres instables. La courbe tracée, d'équation  $\rho_0 = \frac{1}{6} \frac{\gamma}{\mu}$ , correspond à la prédiction théorique (3.21). Nous avons pris pour  $\gamma$  la valeur tabulée de la tension de surface eau-toluène.

Nous avons tracé sur la même figure la prédiction théorique du seuil d'instabilité (3.21), sans paramètre ajustable. Le bon accord observé est un argument fort pour affirmer que la capillarité est à l'origine de l'in-

stabilité observée, et que le seuil d'instabilité provient d'une compétition entre élasticité et capillarité [1].

La longueur d'onde qui apparaît dans les expériences est finie alors que la longueur d'onde la plus instable prédite par la théorie est infinie. Cette différence peut provenir (i) d'effets non-linéaires, nécessairement présents à partir du moment où la perturbation peut être vue macroscopiquement (déplacements finis), (ii) de la nature éventuellement faiblement sous-critique de cette instabilité.

Tanaka et Matsuo [8] ont eux aussi observé une instabilité se manifestant par une modulation longitudinale du rayon d'un cylindre constitué d'un gel. Dans leurs expériences, le liquide situé à l'extérieur du cylindre est le solvant du gel. La composition de ce liquide est ensuite modifiée pour qu'une partie du solvant quitte le gel. Lors de ce processus, le cylindre n'est plus homogène puisque le solvant quitte le gel par la surface. La zone périphérique est moins gonflée que la partie centrale : le module de cisaillement est plus élevé au voisinage de la surface du cylindre qu'au centre. Par ailleurs, en raison de la miscibilité entre le liquide extérieur et le solvant, la tension de surface est dans ce cas microscopique [9]. Il s'agit donc d'une instabilité de nature physique différente de celle que nous avons observée dans cette étude.

### 3.4 Conclusions et perspectives

Nous avons montré ce que devient l'instabilité de Plateau lorsque le liquide est remplacé par un élastique mou.

Le bon accord entre expériences et théorie nous a permis de prouver que les effets capillaires déstabilisent un cylindre élastique à partir du moment où le diamètre du cylindre est inférieur au rapport entre la tension de surface et le module d'Young du matériau constituant le cylindre. D'un point de vue plus fondamental, ce travail prouve que la tension de surface peut avoir un effet sur la forme d'équilibre d'un solide élastique.

La longueur d'onde finie observée et la forme des ondulations des cylindres, sinusoïdale près du seuil et nettement plus compliquée loin du seuil avec des zones de rayons constants séparées par de fines contractions (Fig. 3.5), montrent l'intérêt de développer une analyse non-linéaire. L'approximation des faibles déformations ne sera alors plus valable. Les gels d'agar ne semblent pas adaptés pour une confrontation entre théorie et expériences en présence de grandes déformations. En effet, ces matériaux cessent de se comporter comme des milieux purement élastiques pour des déformations supérieures à 10-15% (ils ont alors un comportement plastique). Il apparaît donc nécessaire d'utiliser un autre type de gel pour ces expériences futures.

Cette instabilité pourrait intervenir dans des processus biologiques, par exemple lors de la formation de filaments, ou lors de la formation de structures en forme de chapelet dans des fibres nerveuses myélinisées [10].

Elle pourrait aussi servir de base pour un procédé de fabrication de fibres à rayon variable de période contrôlée. Avec des périodes de l'ordre de grandeur des longueurs d'onde optiques, ces cylindres pourraient servir de fibres optiques ayant des bandes de longueurs d'onde interdites.

Pour être instable, les cylindres doivent être soit fins, soit très mous. Il s'agit donc d'objets très fragiles, donc difficilement manipulables. Nous avons pensé à une situation plus simple à mettre en œuvre, rendant les applications évoquées ci-dessus plus probables. Il s'agit de la situation moins académique où le matériau mou forme une gaine autour d'une âme solide, par exemple un fil métallique fin (Figs. 3.8-3.9). Le calcul montre que le seuil d'instabilité est alors décalé (comparé au cas du cylindre sans âme) dans le sens des plus grandes tensions de surface et des rayons ou des modules de cisaillement plus petits, même lorsque le rayon de l'âme est beaucoup plus petit que le rayon total. Ce décalage n'est pas surprenant dans la mesure où la présence de l'âme génère des conditions aux limites plus contraignantes. Ces conditions sont, suivant la nature de l'interaction entre le gel et l'âme :

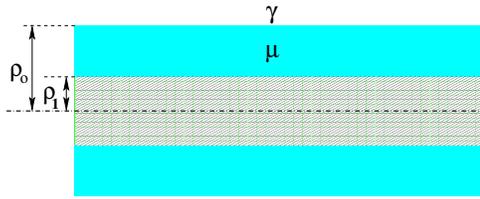


FIGURE 3.8 – Une âme (cylindrique) supposée indéformable de rayon  $\rho_1$  est entourée d'une gaine élastique de module de cisaillement  $\mu$  et de rayon  $\rho_0$ .

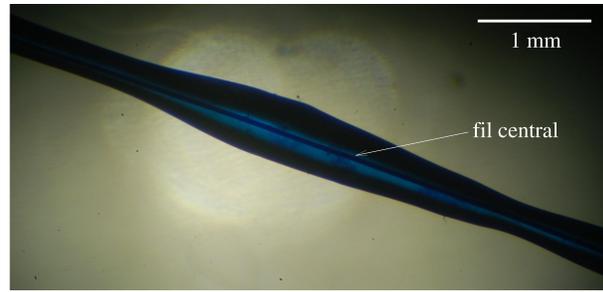


FIGURE 3.9 – Instabilité de surface en présence d'une âme rigide. La présence de l'âme rend le système beaucoup plus solide.

- (i) soit un déplacement nul du solide élastique à la surface de l'âme (condition de non glissement),
- (ii) soit des déplacements tangents à la surface de l'âme (glissement).

## Bibliographie

- [1] S. Mora, T. Phou, J.M. Fromental, L.M. Pismen, and Y. Pomeau. Capillarity driven instability of a soft solid. *Phys. Rev. Lett.*, page 214301, 2010.
- [2] J. Plateau. *Statique Expérimentale et théorique des Liquides Soumis aux Seules Forces Moléculaires*, volume II. Gauthier Villars, Paris, 1873.
- [3] J.W.S. Lord Rayleigh. On the instability of jets. *Proc. London. Math. Soc.*, 10 :4–13, 1878.
- [4] J.W.S. Lord Rayleigh. On the capillary phenomena of jets. *Proc. R. Soc. London*, 29 :71–97, 1879.
- [5] J Eggers. Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows. *Reviews of Modern Physics*, 69(3) :865–929, 1997.
- [6] L.D. Landau and E.M. Lifshitz. *Theory of Elasticity*. Pergamon Press, New York, 1986.
- [7] B. Barrière, K. Sekimoto, and L. Leibler. Peristaltic instability of cylindrical gels. *J. Chem. Phys.*, 105(4) :1735–1738, 1996.
- [8] E.S. Matsuo and T. Tanaka. Patterns in shrinking gels. *Nature*, 358 :482–485, 1992.
- [9] J.G. Kirkwood and F.P. Buff. *J. Chem. Phys.*, 17 :338, 1949.
- [10] S. Ochs, RA. Jersild, R. Pourmand, and CG. Potter. The beaded form of myelinated nerve-fibers. *Neuroscience*, 61 :361–372, 1994.



## Chapitre 4

# Instabilité à la surface de solides homogènes déformés

### Résumé :

Nous<sup>1</sup> avons mis expérimentalement en évidence l'instabilité de la surface d'un milieu élastique fortement déformé, instabilité prédite par M.A. Biot [2] en 1963. Pour cela, nous avons utilisé un fluide viscoélastique modèle ayant un faible module de cisaillement et un temps de relaxation long. Ceci nous a permis de mettre en évidence l'effet de la tension de surface du solide et nous a conduit à développer une approche théorique qui la prend en compte. Cette théorie rend bien état du comportement observé expérimentalement.

### 4.1 Instabilité de Biot

Il y a plus d'un demi siècle, M.A. Biot prédit que la surface d'un bloc élastique semi-infini, incompressible et très déformable, est instable lorsqu'il est contracté dans une direction : il montra que pour une déformation critique, dont la valeur ne dépend pas des propriétés élastiques du matériau, la présence d'ondulations de la surface n'entraîne pas de surcoût d'énergie élastique. Le bloc étant semi-infini, le seul paramètre physique est la constante élastique du matériau. La situation envisagée par Biot ne comporte donc aucune échelle de longueur. Il s'agit certainement d'une des situations les plus simples que l'on puisse imaginer où un système continu est instable.

Nous allons ci-dessous expliquer l'origine physique de cette instabilité. Considérons l'étirement bidimensionnel (pour simplifier) d'un matériau incompressible. Notons  $a$  l'allongement relatif parallèle à la surface (Fig. 4.1).  $a$  est compris entre 0 et 1 car nous supposons que la surface est contractée. L'étirement dans le plan perpendiculaire vaut  $1/a$ . Nous nous permettons un moment de modéliser le matériau par un réseau carré de ressorts ! Soit  $l_0$  la distance entre deux ressorts dans l'état non déformé. Cette distance devient, dans l'état déformé,  $al_0$  pour les ressorts horizontaux et  $l_0/a$  pour les ressorts verticaux (Fig. 4.2).

Supposons qu'une perturbation sinusoïdale apparaisse à la surface libre, avec un vecteur d'onde  $k$  parallèle à la direction de compression. La profondeur de pénétration de cette perturbation sous la surface est nécessairement de l'ordre de  $1/k$ , puisque  $1/k$  est la seule longueur présente (l'amplitude de la perturbation est supposée infiniment petite).

- La perturbation réduit l'étirement des ressorts verticaux situés sous les parties concaves proches de la surface, et l'augmente de la même quantité pour les ressorts situés sous les parties convexes. L'énergie étant une fonction convexe de la déformation, le gain d'énergie provenant des ressorts moins étirés est inférieur au coût d'énergie nécessaire pour étirer un peu plus les autres ressorts. La perturbation se traduit donc globalement

---

1. Travail réalisé en collaboration avec Hervé Tabuteau et Manouk Abkarian (L2C) pour les expériences, et avec Yves Pomeau pour la théorie. Cette étude est publiée dans la référence [1].

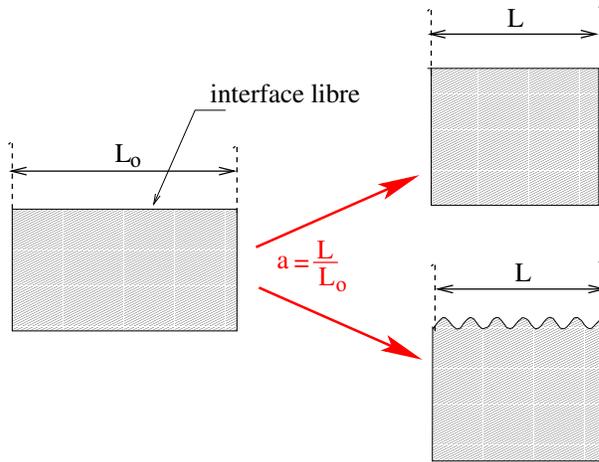


FIGURE 4.1 – Bloc déformé avec un taux d'élongation  $a$ . La surface est contractée ( $0 < a < 1$ ). Pour savoir si la surface est stable, nous comparons l'énergie du système avec une surface plane, à celle avec une surface ondulée.

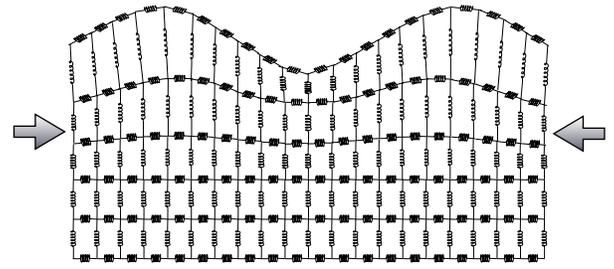


FIGURE 4.2 – Perturbation sinusoidale de la surface d'un bloc incompressible contracté horizontalement. Ce bloc est ici modélisé par un réseau de ressorts. Les ressorts horizontaux voisins de la surface sont moins contractés que ce qu'ils seraient en l'absence de la perturbation. Certains ressorts verticaux (situés sous les parties concaves) sont moins étirés (que si la surface était plane). D'autres (situés sous les parties convexes) sont au contraire plus étirés

par une augmentation d'énergie des ressorts verticaux.

- Par ailleurs, la perturbation augmente l'aire de la surface. La longueur des ressorts « horizontaux » du voisinage de la surface augmente : ces ressorts sont donc moins contractés que si la surface était plane ; leur énergie diminue. Notons que ce gain d'énergie est d'autant plus grand que la déformation initiale est forte (la raison est encore que l'énergie élastique est une fonction convexe).

Il y a donc une compétition entre un effet stabilisant (ressorts verticaux) et un effet destabilisant (ressorts horizontaux). L'effet stabilisant est présent quelle que soit la déformation initiale. L'effet destabilisant est d'autant plus fort que la déformation est grande (la déformation est d'autant plus grande que  $a < 1$  est petit). De cette compétition résulte l'existence d'un seuil d'instabilité.

Ce raisonnement est simpliste dans la mesure où seuls les déplacements verticaux ont été pris en compte. Il permet néanmoins de montrer l'origine de l'instabilité. Biot a prédit un allongement relatif critique  $a^* = 0.445$  [2] en considérant la contraction uniaxiale tridimensionnelle d'un solide néo-hookéen.

Cette instabilité est intrinsèquement différente de l'instabilité de flambage [3], qui apparaît, elle aussi, à partir d'un certain seuil de compression uniaxiale et se traduit par un déplacement latéral. Dans le cas du flambage, la déformation a lieu dans tout le volume. Les rides que forme un film lié à un substrat plus déformable en est un exemple [4] : dans ce cas, le film subit la déformation de flambage sur toute son épaisseur. Les choses sont bien différentes dans le cas de l'instabilité de Biot puisqu'il s'agit alors de l'instabilité d'un milieu élastique *homogène*, localisée au voisinage de la surface libre.

La théorie introduite par Biot soulève plusieurs questions, en particulier lorsqu'il s'agit de comparer les prédictions avec des situations pratiques. Le point le plus important est l'absence d'échelle de longueur caractéristique (bloc semi infini avec une contrainte nulle à la surface libre). Rien ne peut fixer la longueur d'onde des ondulations : infiniment grandes ou infiniment petites, toutes les longueurs d'onde deviennent linéairement instables pour le même seuil d'instabilité  $a^*$ . Ce problème est à l'origine de la quasi absence d'observations expérimentales de cette instabilité. Certains auteurs ont vu la formation de scissures, dans certaines situations expérimentales, comme une conséquence de cette instabilité. Mais ces situations ne correspondent pas vraiment à la situation envisagée par Biot. Gent et al [5, 6], suivis par Hohlfeld [7, 8] ont étudié les scissures qui se forment au creux d'un bloc élastique courbé (là où la courbure est maximale).

La déformation est alors fortement inhomogène, et les surfaces ne sont pas « initialement » planes, contrairement aux hypothèses de Biot. L'apparition d'une scissure se manifeste pour des déformations plus petites que celles que l'on obtient à partir d'une extrapolation du calcul de Biot. D'autres travaux [9, 10, 11, 12] ont porté sur la formation de scissures à la surface libre d'un bloc de gel fixé sur un substrat lors d'un gonflement supplémentaire du gel. Du gonflement à la surface naît une contrainte de compression biaxiale parallèle à la surface puisque, par ailleurs, le gel ne peut s'étendre. Des scissures apparaissent lorsque la compression dépasse une valeur critique. Bien qu'une compression issue du gonflement d'un gel ne soit pas rigoureusement équivalente à une déformation d'origine mécanique [13], certains auteurs [14, 15] ont cherché le lien qu'il pourrait y avoir entre la formation de ces scissures et l'instabilité de Biot. Mais le seuil d'instabilité ne correspond pas à la valeur prédite par un calcul basé sur les arguments de Biot et tenant compte de la compressibilité des gels dans cette situation [14]. L'écart vient probablement de la forte inhomogénéité des propriétés mécaniques au voisinage de la surface du gel, inhomogénéité générée par la diffusion du solvant.

## 4.2 Mises en évidence expérimentales

### 4.2.1 Utilisation de fluides viscoélastiques

L'objectif est d'étudier la stabilité de la surface de matériaux élastiques homogènes soumis à des déformations homogènes. Les prédictions de Biot semblent indiquer que les déformations intéressantes sont supérieures à 100%. Le matériau doit donc, autant que possible, se comporter comme un solide élastique pour de telles déformations. Le caoutchouc reste élastique (il recouvre sa forme initiale) pour des déformations supérieures à 400%. Mais le module de cisaillement, supérieur à 5 MPa, rend difficile l'application de déformations de l'ordre de 100 %. Une lame de caoutchouc, même épaisse, flambe lorsqu'on lui impose une contraction. Il serait très difficile de contracter un bloc de caoutchouc dans une direction : on pourrait imaginer un bloc serré dans un étai. Les forces de pression lors de la compression empêcheraient les parois de glisser, rendant la déformation totalement inhomogène. L'utilisation de matériaux de modules de cisaillement beaucoup plus faibles que celui du caoutchouc permet de contourner ces difficultés. Nous avons choisi des microémulsions connectées (Section 1.2.2).

Puisqu'ils suivent le modèle de Maxwell convecté supérieur, ces matériaux se comportent comme un solide néo-hookéen lorsque les déformations se produisent sur des échelles de temps bien plus courtes que le temps de relaxation (Section 1.1.3). Ce comportement s'applique pour des déformations atteignant plus de 350 % (microémulsions connectées par des chaînes téléchéliques longues, de masse molaire 35 kg) . En jouant sur la formulation, nous avons fait varier les modules de cisaillement tout en maintenant des temps de relaxation significativement plus longs que la durée des déformations. De plus, travailler avec un matériau auto-réparant, comme un fluide, facilite grandement sa mise en place dans les dispositifs expérimentaux.

### 4.2.2 Instabilité sous cisaillement

Un échantillon de microémulsion connectée est placé dans l'entrefer d'un rhéomètre à déformation imposée, en géométrie plan-plan. Les plateaux sont rugueux afin d'éviter tout glissement. Leur rayon est de 2 cm, la distance entre plateaux vaut 2 mm. Un saut de cisaillement d'amplitude  $b$  est appliqué. La durée que met le rhéomètre pour imposer cette déformation (150 ms) est très inférieure au temps de relaxation du fluide (entre 0.7 s et 300 s, selon la composition). A la fin du saut, le cisaillement est maintenu constant. La surface libre de l'échantillon est filmée avec une caméra rapide (Fig. 4.3). Des plis quasi-périodiques sont observés à la surface libre (verticale) de l'échantillon (Fig. 4.4) dès que le cisaillement dépasse une valeur critique notée  $b^*$ . Ils apparaissent simultanément (à la résolution temporelle de la caméra près, 1 ms). Nous avons mesuré la valeur critique  $b^*$  pour une série de gels ayant des modules de cisaillement compris entre 140 et 2000 Pa. Nous n'avons pas trouvé de dépendance significative avec le module de cisaillement :  $b^* = 3.1 \pm 0.1$ . Un cisaillement homogène pouvant être décomposé en une rotation et une dilatation triaxiale pure (théorème

de décomposition polaire), il est possible déduire du calcul de Biot du seuil d'instabilité (effectué pour une élongation) la valeur du seuil pour un cisaillement. D'après [16], la valeur attendue du cisaillement pour un matériau néo-hookéen incompressible est 309 %. L'accord avec la valeur expérimentale du seuil ( $b^*$ ) est donc très bon. De plus, ce calcul prédit une inclinaison des plis de  $16,5^\circ$  par rapport à la direction du cisaillement. Expérimentalement, nous avons mesuré pour cet angle  $16,9^\circ \pm 1^\circ$ . Le bon accord entre théorie et expériences est un argument de poids pour affirmer que ces plis correspondent bien à l'instabilité de Biot.

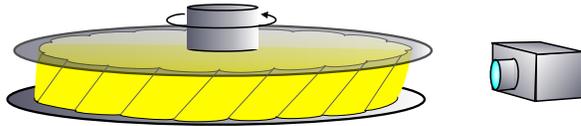


FIGURE 4.3 – Schéma d'une expérience sous cisaillement. L'échantillon est placé dans l'entrefer d'un rhéomètre (géométrie plan-plan rugueux). Un saut de cisaillement est appliqué. Une partie de la surface libre est filmée. Des plis inclinés apparaissent sur tout le pourtour de la surface.

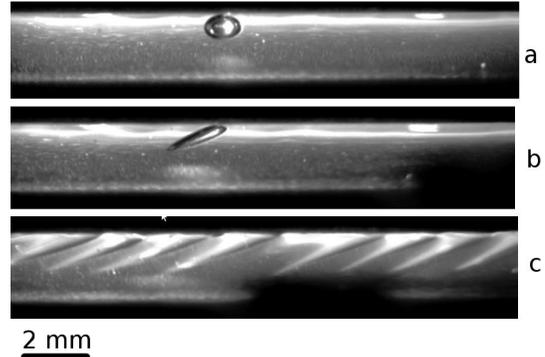


FIGURE 4.4 – Photos de la surface libre. Le module de cisaillement du fluide testé vaut  $\simeq 1040$  Pa, le temps de relaxation  $\simeq 1,6$  s. (a) : cliché pris avant le début du cisaillement. (b) pendant la déformation (100 ms après le début; le cisaillement est alors de 250 %), (c) juste après l'établissement de la déformation finale (200 ms après le début; la déformation vaut alors 315 %). Les plis apparaissent ensemble entre les photos (b) et (c). La bulle (non visible sur la photo (c)) permet de suivre le sens de la déformation.

Nous avons mesuré une distance caractéristique entre deux rides de l'ordre de 1.5 mm, quelle que soit la valeur du module de cisaillement, pour un entrefer de 2 mm et des plateaux de rayon 2 cm. Nous n'avons pas décelé de différence en passant à des plateaux deux fois plus petits. Cette invariance vient probablement de ce que le rayon reste beaucoup plus grand que la longueur élasto-capillaire ( $\gamma/\mu$ , où  $\gamma$  est la tension de surface).

Par ailleurs, nous n'avons pas pu étudier une éventuelle dépendance du seuil, ou de la période des rides, avec la hauteur de l'échantillon. En effet, pour que l'échantillon, fluide, reste confiné entre les plateaux du rhéomètre, la distance entre ces plateaux ne doit pas être beaucoup plus grande que la longueur gravito-capillaire ( $\sqrt{\gamma/(\rho g)}$ ). De plus, les rides étant atténuées au voisinage des plateaux (Fig. 4.4), il devient difficile de les caractériser lorsque la distance entre les plateaux est trop petite.

Afin d'étudier un éventuel effet des dimensions de l'échantillon sur le seuil d'instabilité, nous avons réalisé des expériences dans une toute autre géométrie.

### 4.2.3 Instabilité pour une contraction uniaxiale

Une contraction uniaxiale est une élongation pour laquelle les longueurs se contractent dans une direction, et se dilatent de façon isotrope dans les directions perpendiculaires.

Dans ces expériences, une quantité déterminée de microémulsion connectée (de l'ordre de 5 mL) est étalée sur une feuille de caoutchouc déjà étirée. Elle est laissée au repos pendant une durée bien supérieure au temps de relaxation, de telle sorte que le fluide ait eu le temps de relaxer toute précontrainte. Nous obtenons ainsi un film épais d'épaisseur contrôlée  $h_0$  (l'ordre de grandeur de l'épaisseur est le millimètre), de longueur

$L_0 \simeq 15$  cm et de largeur  $w_0 \simeq 3$  cm. Le rapport entre le module de cisaillement du caoutchouc et celui de l'échantillon ( $\sim 4 \cdot 10^6$  Pa/ $10^3$  Pa) est beaucoup plus grand que le rapport entre l'épaisseur de l'échantillon et celle de la feuille de caoutchouc ( $\sim 10^{-3}$  m/ $10^{-4}$  m). Ainsi, lorsque la tension de la feuille en caoutchouc est relâchée (la longueur passant de  $L_0$  à  $L$ ), la feuille impose sa déformation à l'échantillon. L'adhésion de la microémulsion connectée sur le caoutchouc est suffisante pour qu'il n'y ait pas de décollement. La feuille impose ainsi au plan horizontal inférieur de l'échantillon une déformation biaxiale, avec une contraction  $a = L/L_0$  dans le sens de la longueur, et une elongation  $1/\sqrt{a}$  dans le sens de la largeur. Etant donné que la longueur  $L_0$  et la largeur  $w_0$  de l'échantillon sont beaucoup plus grandes que la hauteur  $h_0$ , la déformation du plan inférieur se propage sur toute la hauteur. Il en résulte une contraction uniaxiale homogène de l'échantillon, avec le taux d'elongation  $a = L/L_0$  (Fig. 4.5, à gauche). Nous avons vérifié à chaque fois que la largeur et la hauteur de l'échantillon varient bien en  $1/\sqrt{a}$ .

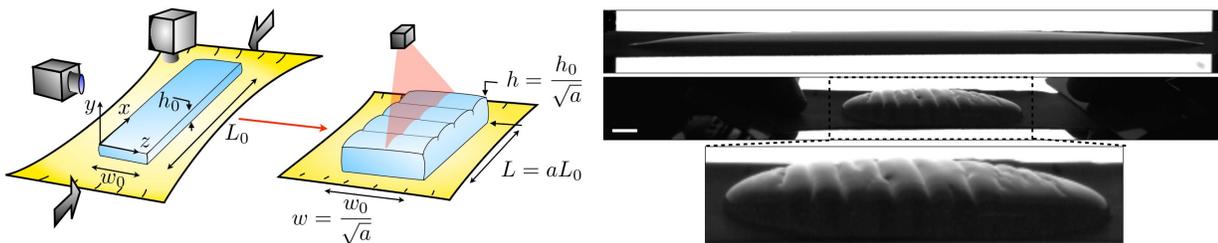


FIGURE 4.5 – A gauche : schéma du dispositif expérimental. La surface est filmée de dessus et de profil (utilisation d'un plan laser). A droite : formation de rides. Les deux photos du haut sont à la même échelle. La ligne blanche en bas à droite mesure 1 cm. La photo du bas est un zoom de la photo du milieu.

Nous observons que, pour un échantillon de composition et de dimensions données :

- lorsque  $a$  est plus grand qu'une certaine valeur notée  $a^*$  (i.e., lorsque la contraction est plus petite qu'un seuil), la surface de l'échantillon reste plate,
- lorsque  $a < a^*$  (grandes déformations), des rides espacées entre elles d'une distance caractéristique  $\Lambda$  se forment à la surface de l'échantillon (Figs. 4.5 et 4.6),
- les rides apparaissent les unes après les autres (Fig. 4.6),
- lorsqu'un défaut préexiste au voisinage de la surface, comme une bulle d'air, la première ride se forme à cet endroit.

Ces expériences ont été réalisées avec des échantillons de différentes hauteurs (entre 0,4 et 2,4 mm) et des fluides de modules de cisaillement (entre 12 et 4200 Pa) et temps de relaxation différents. La valeur de la tension de surface entre l'échantillon et l'air reste la même dans toutes ces expériences. Il s'agit de la même tension de surface que celle entre une microémulsion non connectée et l'air, dans la mesure où la quantité de polymères ajoutés est trop faible pour la changer. Nous avons mesuré, par la méthode de la goutte pendante, une tension de surface  $\gamma \simeq 43$  mN/m [17].

Comme attendu, nous avons constaté que les rides ne se forment pas lorsque la déformation se produit lentement, i.e., sur une durée plus grande que le temps de relaxation  $\lambda$ . Par contre, à partir du moment où nous faisons en sorte que la déformation se produise sur une durée bien inférieure à  $\lambda$ , nous n'avons pas décelé de dépendance du seuil d'instabilité ( $a^*$ ) avec  $\lambda$ .

Nous avons tracé sur la même figure la valeur du seuil d'instabilité  $a^*$  pour des valeurs différentes de  $\mu$  et  $h_0$ , en fonction du paramètre adimensionné  $\mu h_0/\gamma$  (Fig. 4.7). La tension de surface étant fixée dans ces expériences,  $\gamma$  ne sert à ce stade qu'à construire une grandeur sans dimension. Sa prise en compte permettra dans la suite (section 4.3.3) de comparer les mesures avec le modèle développé à la section 4.3.

Les points se regroupent pour former une courbe maîtresse ce qui montre que  $\mu h_0/\gamma$  (à  $\gamma$  constant) est un paramètre pertinent et suffisant pour caractériser le seuil d'instabilité. Le module de cisaillement d'une part, et la hauteur du bloc d'autre part, ont donc un effet sur la valeur du seuil. La figure 4.7 montre que la valeur du seuil  $a^*$  est d'autant plus petite (c'est-à-dire que la contraction est d'autant grande) que le module de

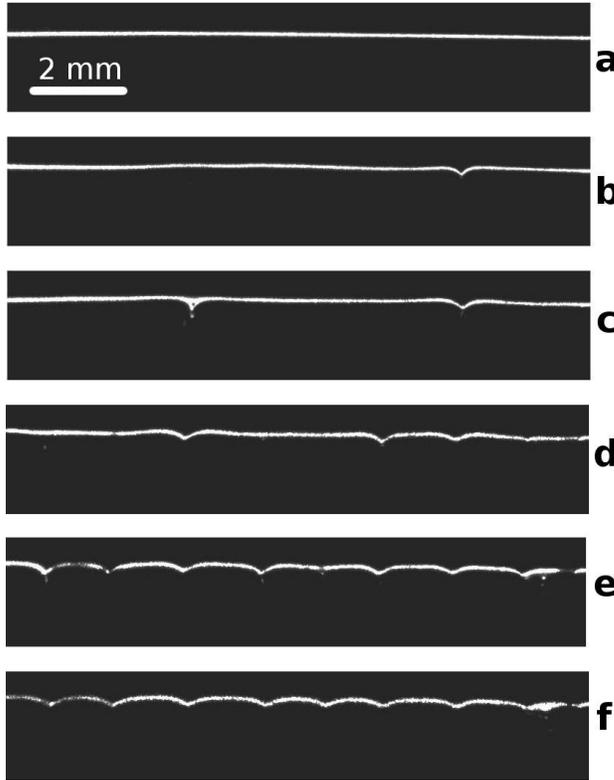


FIGURE 4.6 – Vues de profil (voir Fig. 4.5) d'un échantillon (module de cisaillement  $\mu \simeq 1000 \text{ Pa}$ ; temps de relaxation  $\lambda \simeq 1,2 \text{ s}$ ) subissant la contraction uniaxiale  $L/L_0 = 0,42$  légèrement plus forte que le seuil d'instabilité. Ces clichés ont été pris 15 ms (2), 64 ms (3), 90 ms (4), 140 ms (5) et 300 ms (6) après la fin de la déformation.

cisaillement et que l'épaisseur sont faibles. Ce comportement ne pouvait être prédit par le calcul de Biot, qui considérait un bloc de hauteur infinie. Notons que lorsque le paramètre  $\mu h_0/\gamma$  est grand, ce qui correspond à un bloc infiniment épais, la valeur mesurée du seuil est  $a^* = 0,45 \pm 0,04$ , en accord avec la prédiction de Biot (0,445) [2]. Cet accord constitue un argument de poids pour dire qu'il s'agit bien de l'observation de cette instabilité de Biot.

Nous avons tracé  $\Lambda$ , la distance moyenne entre deux rides, en fonction de la hauteur initiale de l'échantillon,  $h_0$ , après avoir adimensionné ces deux longueurs par la longueur élasto-capillaire (Fig. 4.8). Là encore, nous constatons que les points se regroupent pour former une courbe maîtresse. Il apparaît que :

- $\Lambda \simeq h_0$  lorsque  $\gamma/\mu < h_0$ ,
- $\Lambda$  est significativement plus grand que  $h_0$  lorsque  $\gamma/\mu > h_0$ .

Remarquons que  $\Lambda$  étant de l'ordre de  $h_0$ , il est nécessaire, pour pouvoir visualiser plusieurs plis, de considérer un bloc élastique dont la hauteur est bien plus petite que la longueur.

### 4.3 Régularisation de l'instabilité de Biot

De nombreuses études théoriques ont suivi celle de Biot, par exemple en considérant des matériaux suivant des lois constitutives différentes du modèle néo-hookéen incompressible [18, 19, 20, 21].

Nous introduisons ici, pour un matériau néo-hookéen incompressible, deux échelles de longueur : la hauteur  $h_0$  de l'échantillon qui régularise les grandes échelles, et la longueur élasto-capillaire  $\gamma/\mu$  qui régularise les petites longueurs d'onde. La régularisation aux petites échelles par la longueur élasto-capillaire a été utilisée dans un contexte différent dans la référence [22], ainsi que dans la référence [13] pour traiter le cas d'un gel lié à un substrat, en situation de gonflement [14].

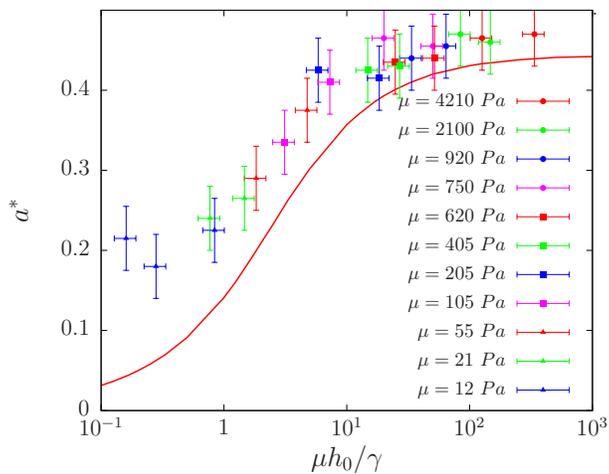


FIGURE 4.7 – Seuil d'instabilité  $a^*$  en fonction du paramètre adimensionné  $\mu h_0/\gamma$ , mesuré pour différents modules de cisaillement et épaisseurs. La courbe rouge est la prédiction théorique établie à la section 4.3.

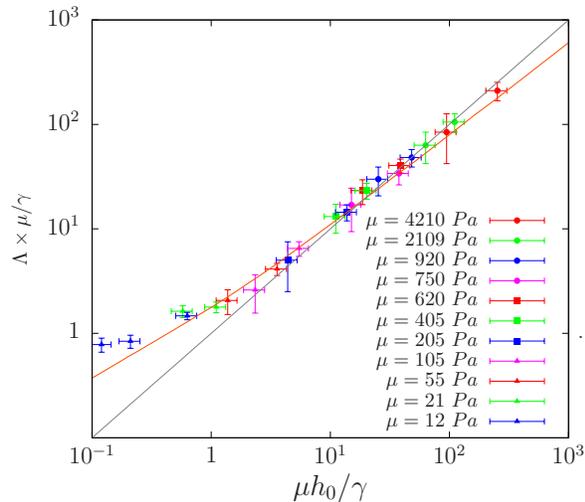


FIGURE 4.8 – Distance caractéristique entre rides, adimensionnée par la longueur capillaire  $\gamma/\mu$ , en fonction de  $\mu h_0/\gamma$ . La courbe rouge est la prédiction théorique établie à la section 4.3.

### 4.3.1 Formulation variationnelle

Soient  $(x, y, z)$  les coordonnées cartésiennes du rayon vecteur  $\mathbf{r}$  d'un point du milieu élastique non déformé. Notons :

$$\mathbf{R}(\mathbf{r}) = (X(x, y, z), Y(x, y, z), Z(x, y, z))$$

le rayon vecteur après une déformation.

Considérons un parallélépipède de longueur (suivant  $x$ ) et de largeur (suivant  $y$ ) infinies, et de hauteur  $h_0$ , tel que les surfaces aient pour équations  $z = -h_0$  et  $z = 0$ . Supposons que la surface en  $-h_0$  soit liée à un substrat déformable de géométrie contrôlée, et que la surface en  $z = 0$  soit la seule surface libre, avec une tension de surface  $\gamma$ . Supposons aussi que ce parallélépipède soit fait d'un matériau néo-hookéen incompressible. Lorsqu'il subit une déformation, son énergie totale, qui est la somme de l'énergie élastique et de l'énergie de surface, vaut :

$$\mathcal{E} = \int dx \int dy \int dz \frac{\mu}{2} I_1 + \gamma \iint dx dz |\mathbf{R}_{,x} \wedge \mathbf{R}_{,z}|, \quad (4.1)$$

où  $I_1$  est la trace du tenseur des déformations (tenseur défini à la section 1.1.2) :

$$I_1 = (X_{,x}^2 + Y_{,x}^2 + Z_{,x}^2 - 1) + (X_{,y}^2 + Y_{,y}^2 + Z_{,y}^2 - 1) + (X_{,z}^2 + Y_{,z}^2 + Z_{,z}^2 - 1). \quad (4.2)$$

L'intégrale double dans (4.1) est l'aire après déformation de la surface d'équation lagrangienne  $y = 0$ .  $|\mathbf{R}_{,x} \wedge \mathbf{R}_{,z}|$  est la norme du produit vectoriel de  $\mathbf{R}_{,x}$  et  $\mathbf{R}_{,z}$ <sup>2</sup>. Dans cette intégrale double, toutes les quantités sont calculées sur la surface, c'est-à-dire pour  $y = 0$ . La minimisation de l'énergie doit se faire en tenant compte de la condition d'incompressibilité  $\mathcal{D}(\mathbf{R}) = 1$  où :

$$\mathcal{D}(\mathbf{R}) = Z_{,z} (X_{,x} Y_{,y} - X_{,y} Y_{,x}) + Z_{,x} (X_{,y} Y_{,z} - X_{,z} Y_{,y}) - Z_{,y} (Y_{,z} X_{,x} - Y_{,x} X_{,z}). \quad (4.3)$$

Nous introduisons pour cette minimisation un multiplicateur de Lagrange  $q(x, y, z)$ . La déformation d'équilibre est telle que la quantité

2.  $|\mathbf{R}_{,x} \wedge \mathbf{R}_{,z}| = \sqrt{(Y_{,x} Z_{,z} - Y_{,z} Z_{,x})^2 + (Z_{,x} X_{,z} - X_{,x} Z_{,z})^2 + (X_{,x} Y_{,z} - X_{,z} Y_{,x})^2}$

$$\mathcal{F} = \int dx \int dy \int dz \overbrace{\left( \frac{\mu}{2} I_1 - q\mathcal{D} \right)}^{\equiv f} + \gamma \int \int dx dz \sqrt{|\mathbf{R}_{,x} \times \mathbf{R}_{,z}|}. \quad (4.4)$$

soit stationnaire, et que  $\mathcal{D} = 1$  partout. La fonction  $f$  (définie dans l'équation (4.4)) dépend de  $x, y, z, X, Y, Z, X_{,x}, X_{,y}, \dots, Z_{,z}$ .

L'équation (4.4) est analogue à l'équation (3.6) de la section 3.2. Nous avons donc procédé comme à la section 3.2. Nous obtenons trois équations en volume (correspondant aux trois composantes cartésiennes de  $\delta\mathbf{R}(x, y, z)$ , une variation infinitésimale du champ des déplacements), et trois équations pour la surface libre (correspondant aux trois composantes cartésiennes de  $\delta\mathbf{R}(x, 0, z)$ ). Pour simplifier l'écriture des équations, posons :

$$\tilde{\sigma}_{ij} = \frac{\partial f}{\partial R_{i,j}}, \text{ avec } R_{i,j} = \frac{\partial R_i}{\partial r_j} \text{ pour } -h_0 \leq y \leq 0, \quad (4.5)$$

$$\Gamma_i = -\frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{\partial |R_{,x} \wedge R_{,z}|}{\partial R_{i,x}} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial |R_{,x} \wedge R_{,z}|}{\partial R_{i,z}} \right) \text{ en } y = 0. \quad (4.6)$$

Les expressions des composantes du tenseur  $\tilde{\sigma}_{ij}$  sont :

$$\begin{aligned} \tilde{\sigma}_{xx} &= \mu X_{,x} - q(Z_{,y} Y_{,z} - Z_{,z} Y_{,y}), \\ \tilde{\sigma}_{xy} &= \mu X_{,y} - q(Z_{,z} Y_{,x} - Z_{,x} Y_{,z}), \\ \tilde{\sigma}_{yx} &= \mu Y_{,x} - q(Z_{,y} X_{,z} - Z_{,z} X_{,y}), \end{aligned} \quad (4.7)$$

la suite s'obtenant par permutation des indices. Notons que ce tenseur n'est pas symétrique en général (il le devient pour de petites déformations). Les expressions du vecteur  $\Gamma_i$  sont plus lourdes à écrire dans le cas général. Elles vont se simplifier dans la suite.

Les trois équations d'Euler-Lagrange en volume sont (pour  $-h_0 \leq y \leq 0$ ) :

$$\begin{cases} \frac{\partial \tilde{\sigma}_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{xy}}{\partial y} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{xz}}{\partial z} = 0, \\ \frac{\partial \tilde{\sigma}_{yx}}{\partial x} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{yy}}{\partial y} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{yz}}{\partial z} = 0, \\ \frac{\partial \tilde{\sigma}_{zx}}{\partial x} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{zy}}{\partial y} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{zz}}{\partial z} = 0. \end{cases} \quad (4.8)$$

Celles de la condition aux limites en  $y = 0$  sont :

$$\begin{cases} \tilde{\sigma}_{xy} + \gamma \Gamma_x = 0, \\ \tilde{\sigma}_{yy} + \gamma \Gamma_y = 0, \\ \tilde{\sigma}_{zy} + \gamma \Gamma_z = 0. \end{cases} \quad (4.9)$$

Ces six équations et la condition d'incompressibilité  $\mathcal{D}(\mathbf{R}) = 1$  permettent de résoudre le problème de l'instabilité de Biot en présence d'une tension de surface.

### 4.3.2 Analyse de la stabilité linéaire

Définissons l'état de base, noté avec les exposants  $(0)$ , comme l'état où le système est déformé suivant la contraction uniaxiale  $a$  parallèle à l'axe des  $x$  :

$$\begin{cases} X^{(0)} = ax, \\ Y^{(0)} = \frac{y}{\sqrt{a}}, \\ Z^{(0)} = \frac{z}{\sqrt{a}}. \end{cases} \quad (4.10)$$

Ainsi défini, l'état de base est bien solution des équations (4.8), (4.9), et de la condition d'incompressibilité. Le multiplicateur de Lagrange vaut alors  $q^{(0)} = \mu/a$ .

Nous allons maintenant chercher une autre solution de ces équations sous la forme d'une perturbation :

$$\begin{cases} X = X^{(0)} + \epsilon X^{(1)}, \\ Y = Y^{(0)} + \epsilon Y^{(1)}, \\ Z = Z^{(0)} + \epsilon Z^{(1)}, \\ q = q^{(0)} + \epsilon q^{(1)}, \end{cases} \quad (4.11)$$

où  $\epsilon$  est un petit paramètre, et où les grandeurs notées avec un exposant <sup>(1)</sup> sont au plus d'ordre 1. Nous imposons que la perturbation est nulle en  $y = -h_0$ , ce qui correspond à la situation expérimentale de la section 4.2.3. Deux cas peuvent se présenter :

- il existe une solution perturbative non nulle quelle que soit la valeur de  $\epsilon \ll 1$ . Ceci signifie que  $\mathbf{R}^{(0)}$  et  $\mathbf{R}^{(0)} + \epsilon \mathbf{R}^{(1)}$  sont tous deux associés à un état stationnaire de l'énergie totale. La perturbation est alors, à l'ordre linéaire, neutre d'un point de vue de l'énergie. Cette situation correspond au seuil d'instabilité. Le taux d'élongation de l'état non perturbé vaut donc  $a^*$ .
- les grandeurs perturbatives sont toutes nulles. Il n'existe alors pas de perturbation d'amplitude infinitésimale solution du problème pour la valeur du taux d'élongation  $a$ . Dans ce cas,  $a \neq a^*$ .  $a$  est soit plus grand (état stable), soit plus petit (état instable) que  $a^*$ . Dans ce dernier cas, l'état non perturbé ne correspond pas à un état d'énergie minimale. Il s'agit soit d'un minimum local (instabilité sous critique), soit un maximum (instabilité sur-critique).

Dans la suite, nous ne retenons que l'ordre linéaire en  $\epsilon$ , et nous considérons une perturbation sinusoïdale suivant l'axe  $x$  :

$$\begin{cases} X^{(1)}(x,y,z) = \bar{X}(y)e^{ikx}, & Y^{(1)}(x,y,z) = \bar{Y}(y)e^{ikx}, & Z^{(1)}(x,y,z) = \bar{Z}(y)e^{ikx}, \\ q^{(1)}(x,y,z) = \bar{q}(y)e^{ikx}, \\ \sigma_{ij}^{(1)}(x,y,z) = \bar{\sigma}_{ij}(y)e^{ikx}. \end{cases} \quad (4.12)$$

En reportant l'expression ces perturbations dans les équations (4.7) et (4.8) et en tenant compte de la condition d'incompressibilité nous obtenons que  $\bar{Z} = 0$  et une équation différentielle linéaire d'ordre 4 pour  $\bar{Y}(y)$  :

$$k^4 \bar{Y} - k^2(1 + a^3) \bar{Y}_{,yy} + a^3 \bar{Y}_{,yyyy} = 0. \quad (4.13)$$

La solution générale de cette équation différentielle est :

$$\bar{Y}(y) = A_1 e^{ky} + A_2 e^{-ky} + B_1 e^{a^{-3/2}ky} + B_2 e^{-a^{-3/2}ky}, \quad (4.14)$$

où  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $B_1$  et  $B_2$  sont des constantes.

L'expression des  $\Gamma_i$  se simplifie en tenant compte de la forme donnée par (4.11) et (4.12) pour les perturbations :

$$\Gamma_x^{(1)} = 0; \Gamma_y^{(1)} = \frac{k^2 \bar{Y}}{a^{3/2}} \text{ et } \Gamma_z^{(1)} = 0. \quad (4.15)$$

D'après (4.9), les conditions aux limites en  $y = 0$  sont donc :

$$\bar{\sigma}_{xy}|_{y=0} = 0; \bar{\sigma}_{yy}|_{y=0} = - \left. \frac{\gamma k^2 \bar{Y}}{a^{3/2}} \right|_{y=0} \text{ et } \bar{\sigma}_{zy}|_{y=0} = 0. \quad (4.16)$$

La dernière équation (pour  $\bar{\sigma}_{zy}$ ) est triviale dans la mesure où  $\bar{\sigma}_{zy}$  est nul dans tout le volume. Le terme de droite (pour  $\bar{\sigma}_{yy}$ ) est une conséquence de la loi de Laplace : la discontinuité normale de la contrainte est proportionnelle à la courbure de la surface.

Les conditions aux limites en  $y = -h_0$  sont  $\bar{X}(-h_0) = \bar{Y}(-h_0) = \bar{Z}(-h_0) = 0$ . La condition sur  $\bar{Z}(-h_0)$  est triviale car  $\bar{Z}$  est nul dans tout le volume. La condition sur  $\bar{X}(-h_0)$  revient à  $\bar{Y}_{,y}(-h_0) = 0$  (d'après la condition d'incompressibilité).

En reportant l'expression (4.14) de  $\bar{Y}$  dans les deux conditions aux limites en  $y = 0$  et les deux conditions aux limites en  $y = -h_0$ , nous obtenons un système homogène de 4 équations à 4 inconnues ( $A_1, A_2, B_1$  et  $B_2$ ). L'existence de solutions non nulles impose que le déterminant de ce système soit nul. Nous obtenons ainsi une condition, sous la forme  $\mathcal{G}(a, k\gamma/\mu, h_0\mu/\gamma) = 0$ , nécessaire et suffisante pour que la perturbation de l'état de base soit non nulle. De cette condition, nous en avons déduit, pour chaque valeur de  $\mu h_0/\gamma$  :

- la valeur  $a^*$  du minimum de la courbe représentant  $a$  en fonction de  $k\gamma/\mu$ ,
- la valeur de  $k\mu/\gamma$  correspondant à  $a^*$ . Nous avons alors défini la longueur d'onde  $\Lambda$  correspondante par :  $\Lambda = 2\pi/k$ .

Nous avons ainsi accès à la valeur du seuil de déformation  $a^*$ , et à la valeur du nombre d'onde du seul mode instable pour cette valeur de la déformation, en fonction du paramètre adimensionné  $h_0\mu/\gamma$ . Les courbes sont tracées Figs. 4.8 et 4.7. Nous trouvons une diminution de  $a^*$  lorsque  $\mu h_0/\gamma$  diminue, et une longueur d'onde  $\Lambda$  de l'ordre de l'épaisseur du bloc  $h_0$  lorsque  $\mu h_0/\gamma > 1$ , et plus grande que  $h_0$  dans le cas contraire :

- si  $\gamma < \mu h_0$ , la tension de surface n'a pas grand effet sur la valeur du seuil, et la longueur d'onde est proche de la hauteur  $h_0$ ,
- si  $\gamma > \mu h_0$ , le seuil est déplacé vers les grandes déformations, et la longueur d'onde est supérieure à  $h_0$ .

Ceci montre l'effet stabilisant de la tension de surface sur l'instabilité. Comme attendu, la capillarité tend à supprimer les petites échelles de longueur.

### 4.3.3 Discussion

Nous avons superposé ces prédictions théoriques aux données expérimentales (Figs. 4.8 et 4.7) sans paramètre ajustable (la tension de surface étant mesurée par ailleurs). Les tendances des courbes expérimentales, tant pour l'évolution de la distance inter-rides que pour la valeur du seuil, en fonction de  $\mu h_0/\gamma$ , sont bien décrites par la théorie. Les déviations les plus significatives pour le seuil apparaissent (Fig. 4.7) pour les grandes déformations (i.e., pour les plus petites valeurs de  $a^*$ ). Elles sont probablement dues aux écarts entre la loi constitutive des fluides et le modèle néo-hookéen, écarts d'autant plus grands que la déformation est grande.

Cet accord (semi-quantitatif) permet de conclure que les allures du seuil et la distance caractéristique obtenues expérimentalement résultent bien des effets conjugués de la tension de surface et de la hauteur finie de l'échantillon. En particulier, les effets stabilisants de la tension superficielle expliquent le décalage observé, vers les grandes déformations, du seuil d'instabilité lorsque  $\mu h_0/\gamma < 1$ .

Les points expérimentaux des figures 4.8 et 4.7 ont été obtenus en partant d'une surface initialement sans défaut. En effet, le temps d'attente entre le dépôt du fluide sur la feuille de caoutchouc tendue et la mise sous déformation a laissé à la surface le temps de s'aplanir. Si, après avoir observé l'instabilité, nous tendons à nouveau la feuille de caoutchouc, puis la détendons après quelques minutes d'attente, l'instabilité réapparaît mais pour des déformations plus faibles. Ceci se produit lorsque l'empreinte des plis formés lors de la première contraction n'a pas complètement disparu. Ce décalage du seuil d'instabilité, entre un premier et un deuxième test, n'existe pas sous cisaillement (section 4.2.2). Cette observation, couplée au fait que, dans le cas de la contraction, si un défaut existe à la surface alors l'instabilité nucléée d'abord à ce niveau là, suggère que l'instabilité est sur-critique dans le cas d'un cisaillement, et sous-critique dans le cas d'une contraction uniaxiale (d'ailleurs, les valeurs expérimentales de  $a^*$  sont systématiquement plus grandes que celles issues de la théorie). Une analyse non-linéaire permettrait de confirmer cette hypothèse. L'accord que nous avons obtenu pour les valeurs du seuil n'est pas en contradiction avec cette hypothèse : la surface reste plane et sans défaut tant que  $a < a^*$ . Elle commence à se destabiliser lorsque  $a = a^*$ , ce qui conduit à la destabilisation fortement non linéaire, observée à la figure 4.6.

## 4.4 Conclusion et perspectives

Nous avons montré que l'instabilité de Biot est observable lorsqu'un échantillon élastique est soumis à une déformation homogène : des plis apparaissent à la surface de l'échantillon pour des déformations supérieures à une déformation critique. Nous avons mis en évidence le rôle de l'épaisseur de l'échantillon, et de la longueur élasto-capillaire. Le rapport de ces deux longueurs détermine la valeur du seuil. La déformation critique est d'autant plus grande que ce rapport est petit. La longueur d'onde déduite de l'analyse linéaire semble bien reproduire la distance moyenne mesurée entre deux plis : elle est égale à l'épaisseur de l'échantillon lorsque la longueur élasto-capillaire est plus petite que l'épaisseur, et devient plus grande que cette dernière dans le cas contraire.

Comme dans le cas de l'instabilité de Rayleigh-Plateau pour un cylindre élastique (section 3), la capillarité joue, à travers une instabilité, un rôle sur la forme d'équilibre d'un solide élastique.

Nous voulons dans un futur proche étudier (théoriquement et expérimentalement) plus en détail le régime non-linéaire de cette instabilité sous contraction. La dynamique d'apparition des plis, leur forme, leurs interactions, soulèvent des problèmes d'intérêts fondamentaux et appliqués. Par exemple, l'instabilité de Biot se manifeste certainement lors du développement d'organes (arbre villositaire placentaire [23], bronches pulmonaires, cortex cérébral [24], plis rétiniens [25], etc.), évolution au cours de laquelle des plis ou des scissures apparaissent alors que l'organe est sous contrainte. Le rôle de cette instabilité - ou d'instabilités apparentées - a été très peu évoqué dans l'étude de la morphogénèse. Les récents travaux du groupe de Martine Benamar [26, 27] ouvrent la voie.

Cette instabilité, d'origine élastique, a été mise en évidence en utilisant des fluides de Maxwell sollicités sur des temps courts. Si les mêmes déformations sont produites sur des temps significativement plus longs que le temps de relaxation du fluide, l'instabilité ne se manifeste pas (comme dans le cas d'un liquide newtonien). Nous voulons donc effectuer une étude complète de cette instabilité pour un fluide viscoélastique modèle, en rajoutant comme paramètre le rapport entre le temps caractéristique associé à la déformation (par exemple un taux de cisaillement si la déformation est stationnaire) et le temps de relaxation du fluide. Nous espérons ainsi pouvoir expliquer l'apparition d'instabilités de surface de fluides viscoélastiques, encore incomprises, observées par les rhéologues et dans des écoulements plus complexes.

## Bibliographie

- [1] Mora S., M. Abkarian, H. Tabuteau, and Y. Pomeau. Surface instability of soft solids under strain. *Soft Matter*, 7 :DOI : 10.1039/c1sm06051a, 2011.
- [2] MA Biot. Surface instability of rubber in compression. *Appl. Sci. Res.*, A12 :168–182, 1963.
- [3] L.D. Landau and E.M. Lifshitz. *Theory of Elasticity*. Pergamon Press, New York, 1986.
- [4] J.Y. Chung, A.J. Nolte, and C.M. Stafford. Surface wrinkling : A versatile platform for measuring thin-film properties. *Adv. Mater.*, 23(3) :349–368, 2010.
- [5] AN Gent. Elastic instabilities of inflated rubber shells. *Rubber Chem. Technol.*, 72(2) :263–268, 1999.
- [6] AN Gent. Elastic instabilities in rubber. *Int. J. Nonlin. Mech.*, 40(2-3) :165–175, 2005.
- [7] E.B. Hohlfeld. *Creasing, Point-bifurcations, and the Spontaneous Breakdown of Scale-invariance*. PhD thesis, Harvard University, 2008.
- [8] E.B. Hohlfeld and L. Mahadevan. Unfolding the sulcus. *Phys. Rev. Lett.*, 106(10) :105702, 2011.

- [9] E Southern and AG. Thomas. Effect of constraints on equilibrium swelling of rubber vulcanizates. *J. Polym. Sci. A*, 3 :641–646, 1965.
- [10] T. Tanaka, ST. Sun, Y. Hirokawa, J. Kucera, Y. Hirose, and T. Amiya. Mechanical instability of gels at the phase-transition. *Nature*, 325 :796–798, 1987.
- [11] H. Tanaka, H. Tomita, A. Tahasu, T. Hayashi, and T. Nishi. Morphological and kinetic evolution of surface patterns in gels during the swelling process - evidence of dynamic pattern ordering. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :2794–2797, 1992.
- [12] M. Guvendiren, S. Yang, and JA. Burdick. Swelling-induced surface patterns in hydrogels with gradient crosslinking density. *Adv. Funct. Mater.*, 19 :3038–3045, 2009.
- [13] M. Ben Amar and P. Ciarletta. Swelling instability of surface-attached gels as a model of soft tissue growth under geometric constraints. *J. Mech. Phys. Solids*, 58(7) :935–954, 2010.
- [14] Veronica Trujillo, Jungwook Kim, and Ryan C. Hayward. Creasing instability of surface-attached hydrogels. *Soft Matter*, 4(3) :564–569, 2008.
- [15] Krishanu Saha, Jungwook Kim, Elizabeth Irwin, Jinhwan Yoon, Farhana Momin, Veronica Trujillo, David V. Schaffer, Kevin E. Healy, and Ryan C. Hayward. Surface creasing instability of soft polyacrylamide cell culture substrates. *Biophys. J.*, 99(12) :L94–L96, 2010.
- [16] M. Destrade, M. D. Gilchrist, D. A. Prikazchikov, and G. Saccomandi. Surface instability of sheared soft tissues. *J. Biomech. Eng-T. ASME*, 130(6), 2008.
- [17] H. Tabuteau, S. Mora, G. Porte, M. Abkarian, and C. Ligoure. Microscopic mechanisms of the brittleness of viscoelastic fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :155501–155504, 2009.
- [18] JL Nowinski. Surface instability of a half-space under high 2-dimensional compression. *J. Franklin I.*, 288(5) :367, 1969.
- [19] SA Usmani and MF Beatty. Surface instability of a highly elastic half-space. *J. Elasticity*, 4(4) :249–263, 1974.
- [20] R Hill and JW Hutchinson. Bifurcation phenomena in plane tension test. *J. Mech. Phys. Solids*, 23(4-5) :239–264, 1975.
- [21] BD Reddy. The occurrence of surface instabilities and shear bands in plane-strain deformation of an elastic half-space. *Q. J. Mech. Appl. Math.*, 36(AUG) :337–350, 1983.
- [22] F. Closa, F. Ziebert, and E. Raphael. Interplay of internal stresses, electric stresses, and surface diffusion in polymer films. *Phys. Rev. E*, 85 :051603, 2011.
- [23] M Castellucci, M Scheper, I Scheffen, A Celona, and P Kaufmann. The development of the human placental villous tree. *Anat. Embryol.*, 181(2) :117–128, 1990.
- [24] S Bayer and J. Altman. *The human brain during the second trimester*. Taylor and Francis, Boca Raton, 2005.
- [25] J.B.L. Bard and A.S.A. Ross. The morphogenesis of the ciliary body of the avian eye : I. lateral cell detachment facilitates epithelial folding. *Dev. Biol.*, 92(1) :73–86, 1982.
- [26] Dervaux J. and M. Ben Amar. Morphogenesis of growing soft tissues. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :068101, 2008.

- [27] Dervaux J., Couder Y., and M. Guedeau-Boudeville, M.A. Ben Amar. Shape transition in artificial tumors : From smooth buckles to singular creases. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :018103, 2011.



# Chapitre 5

## Des formes adoucies

### Résumé :

Nous présentons ici un travail en cours<sup>1</sup>. Nous étudions l'effet de la compétition entre capillarité et élasticité sur la forme d'objets élastiques libres de toute contrainte. Nous montrons que la tension de surface se comporte comme un filtre passe-bas, dans la mesure où elle atténue fortement des hautes fréquences spatiales. Des expériences ont été réalisées en utilisant des gels d'agar et nous avons étudié analytiquement la déformation capillaire de coins d'angles infiniment plats ou infiniment petits.

### 5.1 Introduction

La tension de surface rend une goutte de liquide sphérique, ce qui minimise la surface, lorsque les autres effets comme la gravité où les interactions avec un substrat sont négligeables. Pour les solides, les effets de tension de surface sont en général négligeables par rapport aux effets élastiques car la longueur élasto-capillaire  $\gamma/\mu$ , qui rend compte de l'échelle à laquelle énergies capillaire et élastique sont comparables, est microscopique. Pour les matériaux mous, comme ceux des sections 2, 3 et 4, cette longueur n'est plus microscopique : les effets capillaires se font sentir. La forme d'équilibre d'un cube élastique soumis aux effets de la tension de surface n'est quand-même pas sphérique car les forces élastiques s'opposent à la capillarité. Mais elle n'est plus parfaitement cubique, les angles s'arrondissant pour diminuer l'énergie totale en réduisant l'énergie de surface. Ce phénomène d'adoucisement des angles et des pointes, plus où moins marqué selon les valeurs du module de cisaillement et de la tension de surface, donne un sens à ce que l'on pourrait appeler « solides doux », « soft solids » en anglais.

Nous avons fabriqué un cube élastique en injectant une solution chaude d'agar dans un moule cubique en polystyrène, en la laissant refroidir, en dissolvant le moule avec du toluène, puis en remplaçant le toluène par une huile de silicone de densité identique à celle du gel d'agar afin d'éliminer les effets de la gravité. La figure 5.1 représente une coupe horizontale d'un cube, obtenue en éclairant l'objet immergé dans l'huile avec un plan laser horizontal et en le photographiant d'en haut. La déformation observée (angles et faces arrondis) est une conséquence de la tension de surface : si l'on remplace l'huile par de l'eau (les densités sont proches), l'objet redevient cubique (faces rectilignes, angles droits). Notons que cette déformation est plus marquée si l'on reproduit l'expérience en partant d'une solution d'agar plus diluée, conduisant à un module de cisaillement plus faible. La forme d'équilibre se rapproche d'une sphère pour des tailles de cube comparables à la longueur élasto-capillaire.

Le dièdre (jonction de deux demi-plans formant entre eux un certain angle que nous noterons  $\alpha$ , Fig. 5.2) ne présente pas de longueur géométrique. La seule échelle de longueur que l'on peut construire en considérant un dièdre séparant un milieu élastique (de module cisaillement  $\mu$ ) d'un fluide (la tension de surface étant  $\gamma$ )

---

1. Travail réalisé en collaboration avec Yves Pomeau pour la théorie, et avec Ty Phou, Jean-Marc Fromental et Christophe Goze-Bac pour les expériences. Un premier article est en préparation.

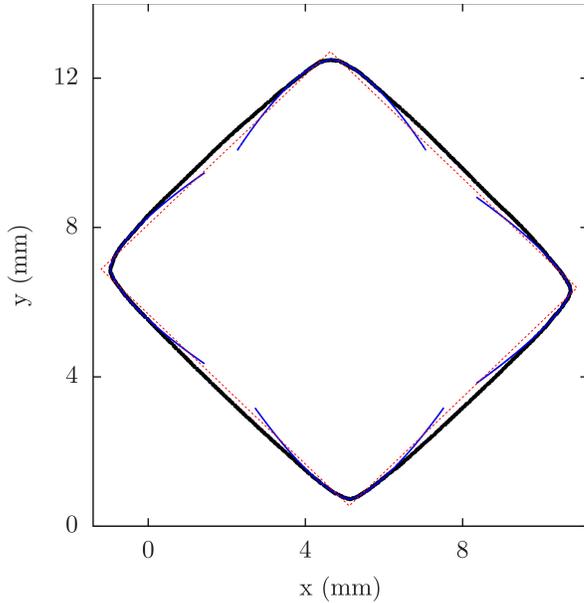


FIGURE 5.1 – Coupe horizontale d'un cube d'agar plongé dans une huile d'égale densité. Les arêtes du cube initial mesurent 8 mm, le module de cisaillement  $\mu = 90$  Pa et la tension de surface  $\gamma = 45$  mN/m. Les pointillés représentent le contour initial. Les portions de courbes (aux angles) représentent des ajustements de  $y = \delta + \beta|x - x_0|^\alpha$ . Nous trouvons  $\alpha = 1,46 \pm 0.06$ .

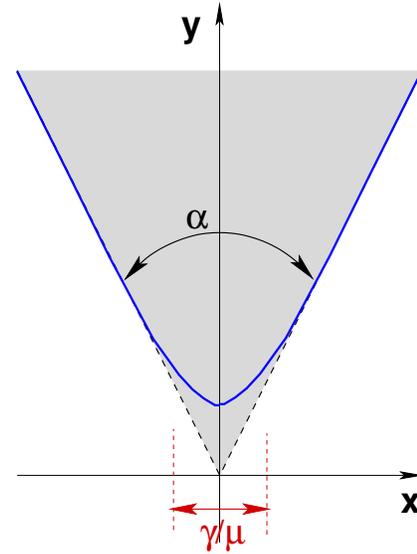


FIGURE 5.2 – Schéma de la déformation d'un dièdre élastique sous l'effet de la capillarité. Les pointillés représentent la forme avant déformation, les courbes continues après déformation. D'après l'expression (5.1), la taille de la zone déformée varie comme  $\gamma/\mu$ .

est la longueur élasto-capillaire. La déformation générée par la tension de surface conduit à une nouvelle forme présentant cette fois une longueur caractéristique, nécessairement de l'ordre de  $\gamma/\mu$ . Si l'équation du dièdre est, en coordonnées cartésiennes,  $y = \frac{1}{\tan(\alpha/2)}|x|$  (Fig. 5.2), alors l'équation de la surface déformée sera de la forme :

$$y = \frac{1}{\tan(\alpha/2)}|x| + \frac{\gamma}{\mu} \cdot \mathcal{F}\left(\frac{x}{\gamma/\mu}, \alpha\right) \quad (5.1)$$

avec  $\lim_{X \rightarrow \infty} \mathcal{F}(X, \alpha) = 0$  (déformation nulle infiniment loin de l'arête).

Si ce dièdre est observé sur des échelles de longueur très supérieures à  $\gamma/\mu$  alors aucun changement ne sera vu. Dans le cas contraire, la déformation sera bien visible. Un matériau sera donc *doux* (« soft ») pour des échelles de longueur de l'ordre de  $\gamma/\mu$  (ou inférieure). Il sera dur vis-à-vis des échelles de longueur beaucoup plus grandes que  $\gamma/\mu$ .

Dans la suite, nous allons déterminer les formes asymptôtiques de la fonction  $\mathcal{F}$  (c'est-à-dire de la surface du dièdre déformé par la capillarité), en nous intéressant aux cas où l'angle  $\alpha$  est soit proche de 0, soit proche de  $\pi$ . Nous allons aussi présenter le même type de résultat pour le cône.

## 5.2 Lemme : contraction capillaire

Nous traitons dans cette section un problème qui servira au calcul de la déformation d'un coin d'angle infiniment petit.

La capillarité change la forme des objets en adoucissant les angles, et aussi en modifiant les dimensions. En effet, un changement de rapport d'aspect permet, tout en conservant le même volume et au prix d'une certaine énergie élastique, de diminuer l'énergie de surface d'un objet.

### 5.2.1 Cylindre infini

Considérons un cylindre néo-hookéen de module de cisaillement  $\mu$ , infiniment long, non déformé, de rayon  $r_0$ . Supposons que l'environnement change, de telle sorte que la tension de surface passe de 0 à  $\gamma$ . Plaçons-nous en coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$ , et considérons une déformation axisymétrique. On peut montrer que la déformation du cylindre est alors une déformation homogène :  $R = \frac{r}{\sqrt{\lambda}}$ ;  $Z = \lambda z$ . Pour un solide néo-hookéen, l'énergie totale vaut :

$$\mathcal{E} = 2\pi\mu r_0^2 \int dz \left[ \left( \frac{1}{\lambda} - 1 \right) + \frac{1}{2} (\lambda^2 - 1) \right] + 2\pi\gamma \int dz r_0 \sqrt{\lambda} \quad (5.2)$$

La première intégrale correspond à l'énergie élastique, la deuxième à l'énergie de surface. En minimisant cette énergie (rapportée à l'unité de longueur lagrangienne) par rapport à  $\lambda$ , nous obtenons :

$$\lambda^3 + \left( \frac{\gamma}{2r_0\mu} \right) \lambda\sqrt{\lambda} - 1 = 0. \quad (5.3)$$

La solution (positive) de cette équation est :

$$\lambda = \left[ 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{\gamma}{2r_0\mu} \right)^2 - \frac{1}{2} \left( \frac{\gamma}{2r_0\mu} \right) \sqrt{4 + \left( \frac{\gamma}{2r_0\mu} \right)^2} \right]^{1/3}. \quad (5.4)$$

$\lambda$  est inférieur à 1 : le cylindre se contracte. Pour réduire la surface (par unité de masse), le cylindre s'épaissit.  $\lambda$  est d'autant plus petit (proche de 0) que le rapport  $\gamma/(\mu r_0)$  est grand : plus les effets capillaires sont grands, plus l'augmentation du rayon est forte.

Afin de vérifier quantitativement ce résultat, nous avons réalisé des moules cylindriques en polystyrène. Une solution d'agar liquide est introduite dans un moule. Le moule est dissous dans du toluène après avoir laissé au gel le temps de prendre. Nous obtenons ainsi un cylindre immergé dans du toluène. Contrairement aux expériences de la section 3, le cylindre d'agar n'est pas tenu par ses extrémités, ce qui lui laisse la possibilité de se rétracter. Nous avons mesuré la longueur du cylindre avant dissolution (dans le moule) et après (Fig. 5.3). Ces expériences ont été réalisées pour différents rayons (0,9 ; 1,5 ; 2,5 ; 3 et 4 mm) et différentes concentrations d'agar (0,2 ; 0,3 et 0,4%), i.e., différents modules de cisaillement (35 ; 110 et 230 Pa). Nous avons tracé à la figure 5.4 le rapport  $\lambda$  des longueurs finale et initiale en fonction du paramètre sans dimension  $\gamma/(\mu r_0)$ , où  $r_0$  est le rayon du moule,  $\mu$  est le module de cisaillement mesuré par ailleurs, et  $\gamma$  est la tension de surface agar-toluène ( $\gamma = 36,5$  mN/m). L'accord avec l'expression (5.4) est bon.

Notons que la limite d'élasticité des gels d'agar correspond à une déformation de l'ordre de 15%. Il ne serait donc pas pertinent de chercher à vérifier l'expression théorique (5.4) pour de plus grandes valeurs de  $\gamma/(\mu r_0)$  que celles de la figure 5.4 en utilisant des gels d'agar.

### 5.2.2 Tranche infinie

Considérons un problème analogue à celui de la contraction homogène du cylindre sous l'effet de la tension de surface : soit une tranche de matériau élastique néo-hookéen, incompressible, et de module de cisaillement  $\mu$ . Soit  $h_0$  l'épaisseur de cette tranche. Nous supposons que la tranche est infiniment grande dans les directions  $x, y$ . Elle est donc définie par le domaine  $0 < z < h_0$ . Supposons que l'environnement extérieur change, faisant passer la tension de surface de 0 à  $\gamma$ . Un cheminement proche de celui de la section 5.2.1 permet de conclure que le matériau subit l'élongation homogène  $X = x/\sqrt{\lambda}$ ,  $Y = y/\sqrt{\lambda}$ ,  $Z = \lambda z$ , avec :

$$\lambda = \left( 1 + \frac{2\gamma}{\mu h_0} \right)^{1/3}. \quad (5.5)$$

L'épaisseur de la tranche augmente donc : la surface par unité de masse diminue.

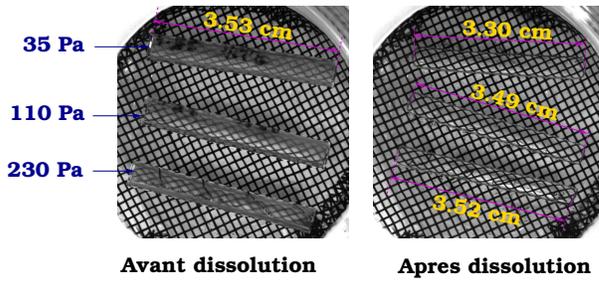


FIGURE 5.3 – Les 3 moules de la photo de gauche, de longueur et de rayons identiques, sont remplis de gels d'agar de modules de cisaillement différents. La longueur des cylindres a changé après dissolution des moules. Noter la forme arrondie des extrémités, surtout visible pour les cylindres les plus mous.

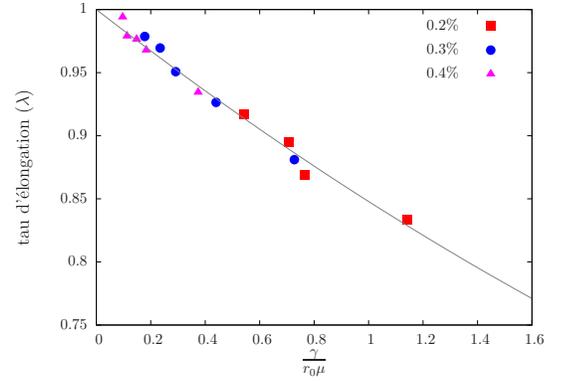


FIGURE 5.4 – Taux d'élongation ( $\lambda$ ) en fonction de  $\gamma/(\mu r_0)$ , pour des cylindres de différents rayons et de différents modules de cisaillement. La courbe correspond à l'expression théorique (5.4).

## 5.3 Déformations d'angles très aigus

### 5.3.1 Dièdres

Considérons un coin d'angle  $\alpha \ll 1$ , infiniment long dans la direction transverse, constitué d'un solide néo-hookéen incompressible de module de cisaillement  $\mu$ . Il est placé dans un milieu extérieur de telle sorte que la tension interfaciale passe de 0 à  $\gamma$ . Soit  $(Oz)$  la bissectrice de l'angle, l'origine de cet axe - orienté dans la direction du matériau - étant le sommet du coin (Fig. 5.5).

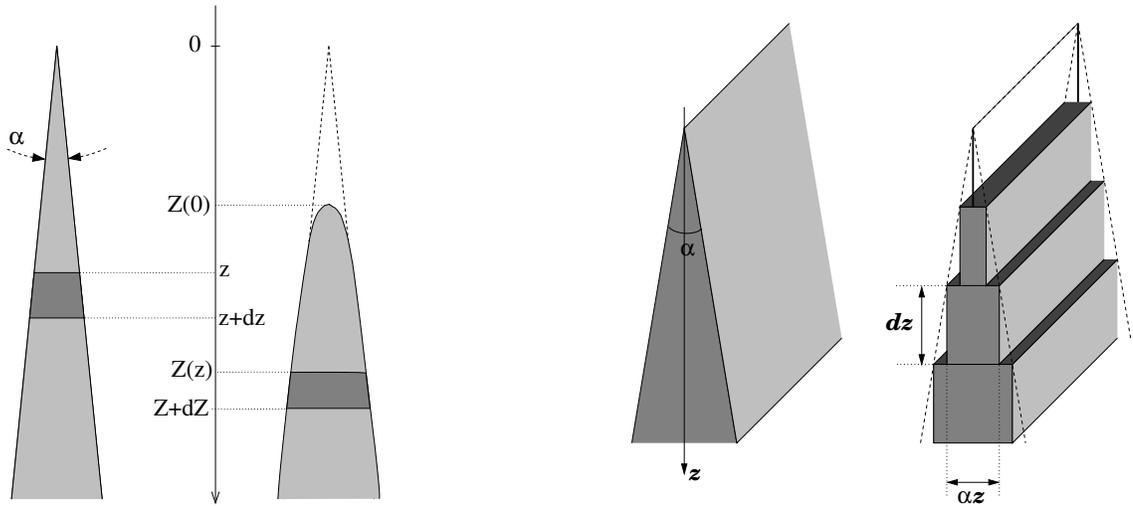


FIGURE 5.5 – Calcul de la déformation d'un coin d'angle d'ouverture  $\alpha$ .

Considérons dans un premier temps la tranche de matière située initialement entre  $z$  et  $z+dz$ . L'épaisseur de cette tranche vaut  $\alpha z$  et sa hauteur  $dz$ . Nous choisissons  $dz$  infiniment plus petit que l'autre longueur caractéristique :

$$dz \ll \frac{\gamma}{\mu}. \quad (5.6)$$

Considérons des valeurs de  $z$  telles que :

$$\alpha \cdot z \gg dz. \quad (5.7)$$

Puisque  $\alpha \ll 1$ , cette dernière condition est compatible avec  $z \ll dz$ . Les conditions (5.6) et (5.7) impliquent finalement que :

$$\alpha z \ll \frac{\gamma}{\mu}. \tag{5.8}$$

D'après la condition (5.7), l'épaisseur  $\alpha z$  de la tranche est beaucoup plus petite que les deux autres dimensions, de telle sorte qu'elle puisse être considérée comme une tranche de dimensions latérales infinies. Cette tranche est liée en  $z$  et en  $z + dz$  à des tranches voisines. Ces dernières lui exercent une contrainte. Mais puisque  $\alpha z \ll dz$ , la surface de contact avec les tranches voisines est infiniment plus petite que la surface latérale, et ces interactions sont négligeables. La capillarité fait donc subir à la tranche de hauteur  $dz$  et d'épaisseur  $\alpha z$  la déformation calculée à la section 5.2.2. Elle se trouve donc, dans l'état déformé, entre  $Z$  et  $Z + dZ$  avec  $dZ = dz/\sqrt{\lambda(z)}$  où  $\lambda(z) = \left(1 + \frac{2\gamma}{\mu\alpha z}\right)^{1/3}$ . L'épaisseur de la tranche passe de  $2x = \alpha \cdot z$  à  $2X = \lambda(z)\alpha \cdot z$ . Nous en déduisons que (pour  $z \ll \frac{\gamma}{\alpha\mu}$ ) :

$$Z(z) - Z(0) = \int_0^z dz/\sqrt{\lambda(z)} = \int_0^z \left(1 + \frac{2\gamma}{\mu\alpha z}\right)^{-1/6} dz \simeq \frac{12\gamma}{7\mu\alpha} \left(\frac{\mu\alpha z}{2\gamma}\right)^{7/6}, \tag{5.9}$$

$$X = \frac{\gamma}{\mu} \left(\frac{\mu\alpha z}{2\gamma}\right)^{2/3}, \tag{5.10}$$

d'où :

$$Z = Z(0) + \frac{12\gamma}{7\mu\alpha} \left(\frac{|X|}{\gamma/\mu}\right)^{7/4} + \dots \tag{5.11}$$

Cette équation est l'expression de la forme d'équilibre du coin au voisinage de l'arête ( $X \ll \gamma/\mu$ ). Nous l'avons tracée à la figure 5.6. Remarquons que le rayon de courbure en  $X = 0$  est nul. L'arête déformée n'a donc pas de cercle tangent au sommet, et la pression de Laplace reste singulière.

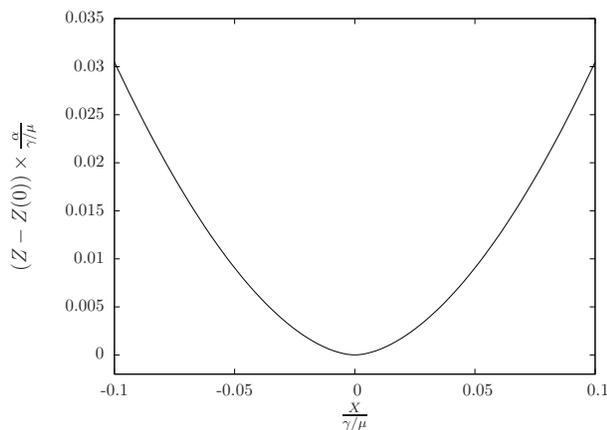


FIGURE 5.6 – Forme d'équilibre d'un dièdre de tension de surface  $\gamma$  et de module de cisaillement  $\mu$ , tracée d'après l'équation (5.11).

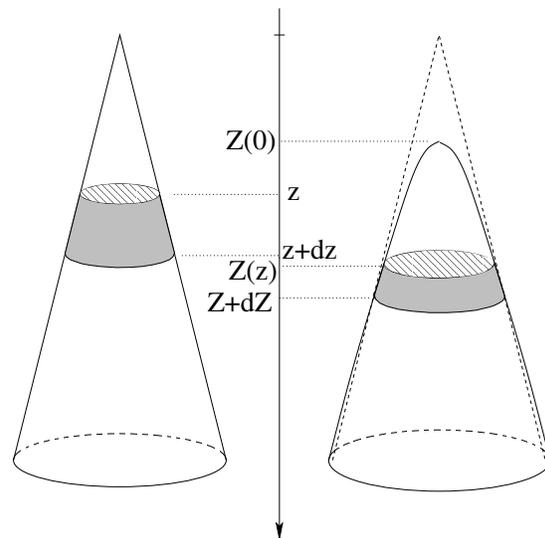


FIGURE 5.7 – Déformation d'un cône sous l'effet de la tension de surface. Si l'angle d'ouverture est infiniment petit, le sommet du cône peut être décomposé en une infinité de cylindres subissant la déformation calculée par (5.4).

### 5.3.2 Cônes

La déformation capillaire d'un cône d'angle d'ouverture  $\alpha$  infiniment petit se traite de la même façon, au voisinage du sommet, en décomposant le cône en éléments cylindriques de hauteur  $dz$  (Fig. 5.7). Chaque élément cylindrique se déforme suivant l'expression (5.4) : l'élément cylindrique compris entre  $z$  et  $z + dz$ , de rayon  $\alpha z/2$ , se transforme en un cylindre de longueur  $dZ = \lambda(z)z$  et de rayon  $R = \frac{\alpha z}{2\sqrt{\lambda(z)}}$  avec

$$\lambda(z) = \left[ 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{\gamma}{\alpha z \mu} \right)^2 - \frac{1}{2} \left( \frac{\gamma}{\alpha z \mu} \right) \sqrt{4 + \left( \frac{\gamma}{\alpha z \mu} \right)^2} \right]^{1/3} \simeq \left( \frac{\alpha z \mu}{\gamma} \right)^{2/3} \text{ pour } z \ll \frac{\gamma}{\alpha \mu}. \quad (5.12)$$

Nous obtenons ainsi la forme d'équilibre de la pointe d'un cylindre déformé par la capillarité :

$$Z = Z(0) + \frac{12\sqrt{2}}{5} \left( \frac{\gamma}{\mu \alpha} \right) \left( \frac{R}{\gamma/\mu} \right)^{5/2}. \quad (5.13)$$

## 5.4 Lemme : filtre passe-bas capillaire

Nous traitons dans cette section un problème qui servira au calcul de la déformation d'un coin d'angle proche de  $\pi$ .

Soit un solide élastique semi-infini dont la surface est décrite par l'équation  $y = \zeta(x)$  (invariance suivant la direction  $(Oz)$ , Fig. 5.8). Il est dans un état d'énergie stationnaire lorsque la tension de surface est nulle. Il est ensuite placé dans un milieu où la tension de surface ( $\gamma$ ) le déforme : un point de coordonnées  $(x,y)$  se retrouve aux coordonnées  $(X,Y)$  :

$$\begin{cases} X = X(x,y), \\ Y = Y(x,y). \end{cases}$$

La condition d'incompressibilité est  $X_{,x}Y_{,y} - X_{,y}Y_{,x} = 1$ . Introduisons les fonctions  $X_{\partial}$  et  $Y_{\partial}$ , qui définissent la déformation de la surface :

$$\begin{cases} X_{\partial}(x) = X(x, \zeta(x)), \\ Y_{\partial}(x) = Y(x, \zeta(x)). \end{cases}$$

Pour un solide néo-hookéen incompressible de module élastique  $\mu$ , la minimisation de l'énergie totale (élastique + capillaire) conduit aux conditions suivantes sur la déformation :

$$\frac{\partial}{\partial x} (\mu X_{,x} - q Y_{,y}) + \frac{\partial}{\partial y} (\mu X_{,y} + q Y_{,x}) = 0, \quad (5.14)$$

$$\frac{\partial}{\partial x} (\mu Y_{,x} + q X_{,y}) + \frac{\partial}{\partial y} (\mu Y_{,y} - q X_{,x}) = 0, \quad (5.15)$$

où  $q(x,y)$  est un multiplicateur de Lagrange portant sur la condition d'incompressibilité, avec pour conditions aux limites en  $y = \zeta(x)$  :

$$\mu X_{,y} + q Y_{,x} - \gamma \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{X_{\partial,x}}{\sqrt{X_{\partial,x}^2 + Y_{\partial,x}^2}} \right) - (\mu X_{,x} - q Y_{,y}) \zeta_{,x} = 0, \quad (5.16)$$

$$\mu Y_{,y} - q X_{,x} - \gamma \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{Y_{\partial,x}}{\sqrt{X_{\partial,x}^2 + Y_{\partial,x}^2}} \right) - (\mu Y_{,x} + q X_{,y}) \zeta_{,x} = 0. \quad (5.17)$$

D'après Eq. (5.17) nous remarquons que  $q = \mu$  dans l'état non déformé (lorsque  $\gamma = 0$ ).

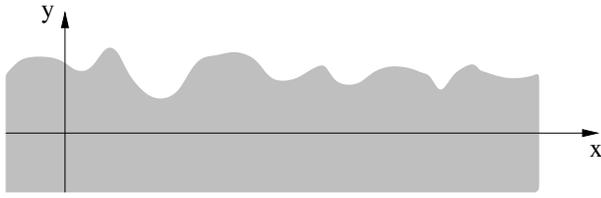


FIGURE 5.8 – Etat non déformé. La surface a pour équation  $y = \zeta(x)$ .

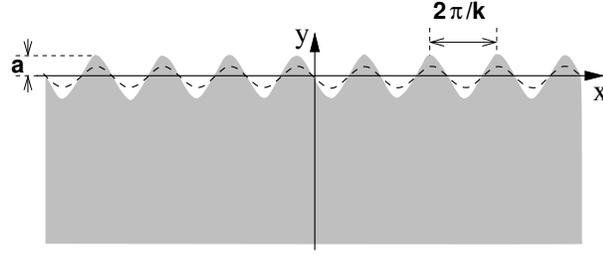


FIGURE 5.9 – Surface sinusoïdale non déformée de vecteur d'onde  $k$ . En pointillés : surface déformée par la tension de surface.

Supposons que la surface non déformée soit sinusoïdale (Fig. 5.9). En notations complexes :

$$\zeta(x) = ae^{ikx}, \quad (5.18)$$

où  $k$  est le nombre d'onde et  $a$  l'amplitude. Supposons que  $ka \ll 1$  (faibles inclinaisons de la surface). Posons alors  $\epsilon = ka$ , et cherchons des solutions des équations (5.14)-(5.17) sous la forme :

$$X = x + \epsilon X^{(1)}(y)e^{ikx}, \quad Y = y + \epsilon Y^{(1)}(y)e^{ikx}, \quad q = \mu + \epsilon q^{(1)}(y)e^{ikx}.$$

En ne retenant que les termes d'ordre 1 en  $\epsilon$  dans les équations (5.14)-(5.17) et dans la condition d'incompressibilité, nous trouvons :

$$X^{(1)}(y) = -i \frac{\gamma/\mu}{2 + (\gamma/\mu)k} e^{ky}, \quad (5.19)$$

$$Y^{(1)}(y) = -\frac{\gamma/\mu}{2 + (\gamma/\mu)k} e^{ky}. \quad (5.20)$$

L'équation de la surface déformée s'obtient en considérant les déplacements en  $y = ae^{ikx}$ . Au premier ordre en  $\epsilon$  :

$$Y = ae^{ikx} - \epsilon \frac{\gamma/\mu}{2 + (\gamma/\mu)k} e^{ikx} = \frac{1}{1 + \frac{\gamma}{2\mu}k} ae^{ikx}. \quad (5.21)$$

En conclusion :

$$\frac{\text{amplitude finale}}{\text{amplitude initiale}} = \frac{1}{1 + \frac{\gamma}{2\mu}k}. \quad (5.22)$$

La tension de surface se comporte comme un filtre passe-bas, de fréquence (spatiale) de coupure  $(2\mu/\gamma)$ .

## 5.5 Déformation de coins d'angle proche de $\pi$

Intéressons-nous maintenant au cas où l'angle  $\alpha$  est proche de  $\pi$  : notons  $\epsilon = \frac{1}{2}(\pi - \alpha)$ . L'équation de la surface non déformée est (Fig. 5.10)  $y = -\epsilon|x|$ . Décomposons cette surface en modes de Fourier de vecteurs d'onde  $k$ , et supposons que  $\epsilon \ll 1$  afin de pouvoir linéariser toutes les équations. En appliquant pour chaque mode la fonction de transfert (5.22), nous obtenons l'équation de la surface déformée :

$$Y(x) = \epsilon|x| + \epsilon \frac{2\gamma}{\pi} \int_0^\infty \frac{-\cos(kx)}{2\mu k + \gamma k^2} dk. \quad (5.23)$$

Cette intégrale diverge lorsque  $x = 0$ . Nous devons introduire une coupure pour les grandes longueurs d'onde :  $k < 1/L$  où  $L$  est la taille du coin. Nous trouvons alors (courbe tracée à la figure 5.11) :

$$Y(x) = \frac{\gamma}{2\mu} \epsilon \left\{ -\frac{2}{\pi} \ln \left( \frac{2\mu L}{\gamma} \right) + \frac{1}{\pi} \left( \frac{2\mu}{\gamma} x \right)^2 \ln \left| \frac{2\mu}{\gamma} x \right| + \frac{1}{\pi} \left( \Gamma - \frac{1}{2} \right) \left( \frac{2\mu}{\gamma} x \right)^2 + \dots \right\}, \quad (5.24)$$

où le développement est effectué en supposant  $x\mu/\gamma$  petit, et où  $\Gamma$  est la constante d'Euler<sup>2</sup>. Cette expression introduit une dépendance de la déformation de l'arête avec la taille totale du coin, suivant une divergence logarithmique. La déformation capillaire intervient donc à longue portée. Ce résultat se comprend aisément : le déplacement de l'arête est d'autant plus grand que le matériau peut s'accommoder à la contrainte capillaire sur une grande distance.

La courbure au voisinage de  $x = 0$  est

$$\frac{1}{R} = Y_{,xx} = \frac{4\epsilon\mu}{\pi\gamma} \left\{ \ln \left| \frac{2\mu}{\gamma} x \right| + \Gamma - 2 + \dots \right\}. \quad (5.25)$$

Nous retrouvons une divergence de la courbure en  $x = 0$ .

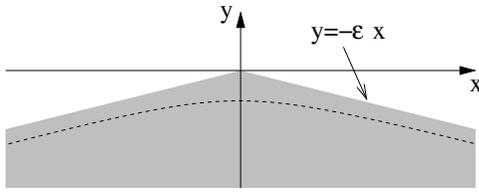


FIGURE 5.10 – Arête non déformée. La surface a pour équation  $y = -\epsilon|x|$ . En pointillés : surface déformée par la tension de surface.

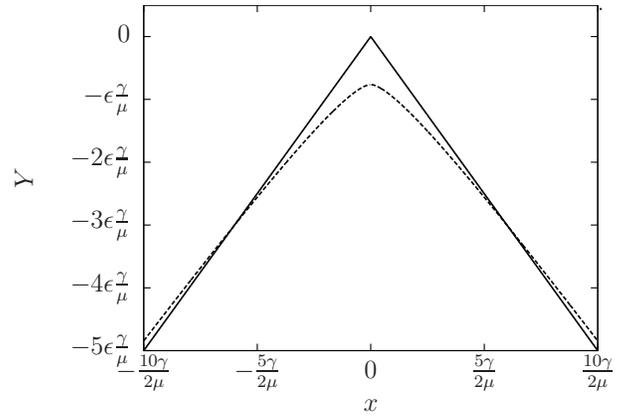


FIGURE 5.11 – Surface non déformée (ligne continue) et surface déformée (pointillés), tracée à partir de Eq. (5.24). La taille caractéristique de l'échantillon est  $L = \frac{10\gamma}{\mu}$ .

## 5.6 Perspectives

Les expressions obtenues pour des valeurs asymptôtiques de  $\alpha$  correspondent à des situations expérimentales difficilement accessibles. Nos efforts se concentrent donc sur le calcul de la forme d'un coin déformé d'angle initial fini. Dans les cas où l'angle n'est pas infiniment proche de  $\pi$ , la déformation au voisinage du sommet sort du cadre des petites déformations. Il est donc nécessaire de considérer, tant pour les calculs que pour les expériences, un matériau restant élastique pour des déformations finies. Des expériences avec des gels de compositions différentes doivent permettre de s'assurer que les formes d'équilibre observées ne viennent pas, par exemple, d'effets plastiques. Pour des gels d'agar, ces effets sont connus pour apparaître lorsque la déformation excède 10 à 15 %. Par contre, les gels de polyacrylamide réticulés ont un comportement néo-hookéen sur une gamme de déformations bien plus grande. Ces derniers ayant des modules

2.  $\Gamma = 0,58\dots$

élastiques largement supérieurs à ceux que l'on peut obtenir avec l'agar, les expériences devront être réalisées à plus petite échelle (observation sous microscope).

Un coin peut être considéré comme étant infini à partir du moment où ses dimensions sont largement supérieures à la longueur élasto-capillaire, une condition facilement satisfaite dans les expériences. Nous allons dans un futur proche déterminer les contours de coins, d'angle donné, pour des gels de différents modules élastiques et tester l'invariance de cette forme après adimensionnalisation par  $\gamma/\mu$ . Nous espérons ainsi avoir expérimentalement accès à l'exposant caractérisant cette forme au voisinage de la pointe, puis connaître ses variations en fonction de l'angle. Nous pourrions, par extrapolation, tester l'accord avec les théories asymptotiques des sections 5.3.1 et 5.5. La dépendance du déplacement de la pointe avec la taille du coin, taille nécessairement finie dans les expériences, ne devrait pas avoir d'effet sur la forme dont il est question plus haut. Nous voulons aussi étudier ce déplacement en faisant varier le rapport de la dimension du coin et de la longueur capillaire. Une divergence logarithmique, comme celle qui apparaît à la section 5.5, nécessiterait de faire varier ce rapport sur une large gamme.

L'effet de la taille des objets se manifeste plus clairement lorsqu'ils sont de section finie, comme la forme cubique. L'analyse est alors plus complexe puisqu'à l'adoucissement des angles s'ajoute une contraction (ou un étirement) de la forme générale. Des simulations mises en œuvre par Basile Audoly et Corrado Maurini (Institut d'Alembert) utilisant la méthode des éléments finis sont sur le point d'aboutir pour calculer la forme de la coupe transverse d'un barreau infiniment long à section carrée. Ces résultats seront comparés à de prochaines expériences. En faisant varier  $\gamma/(\mu a)$  où  $a$  est la longueur d'un côté de section carrée, nous devrions obtenir des formes d'équilibre de la section, allant du carré peu déformé à une forme quasi circulaire. Dans un second temps, des simulations tridimensionnelles sont programmées (cube par exemple).

Considérons un sommet d'un cube, ou d'un cône : cette pointe est déformée par la capillarité, en étant adoucie. La section est de plus en plus fine en se rapprochant du sommet, où elle est nulle. L'instabilité de Plateau élastique, démontrée et étudiée à la section 3 doit donc se manifester à partir d'une certaine distance, près du sommet. La forme d'équilibre de la pointe n'aurait-elle pas, au voisinage de la pointe, l'allure d'un empilement de torres de plus en plus petits en allant vers le sommet, et ce, quel que soit le module élastique, pourvu que la longueur élasto-capillaire ne soit pas microscopique ?



# Chapitre 6

## Fractures fragiles de fluides viscoélastiques

**Résumé :** Nous<sup>1</sup> avons étudié la nucléation et la propagation de fractures dans des fluides viscoélastiques modèles, des microémulsions connectées par des polymères téléchéliques. Nous avons mis en évidence (i) que ces fractures sont fragiles et thermiquement activées, (ii) que la longueur élasto-capillaire  $\gamma/\mu$  étant macroscopique ( $\gamma$  est la tension de surface et  $\mu$  est le module de cisaillement), les déformations élastiques finies au voisinage de la tête de fracture déterminent la forme de l'ouverture.

### 6.1 Mise en évidence

Une fracture est une surface de discontinuité d'une structure, créée par une contrainte : l'arrangement des constituants du matériau est interrompu au niveau de cette surface. Les fluides complexes ayant une structure mésoscopique peuvent être sujets à ce phénomène. La structure n'étant dans ce cas pas figée afin de permettre au matériau de s'accommoder à n'importe quelle forme, elle ne peut être brisée que pour des taux de déformation supérieurs à ceux qui permettent au fluide de s'écouler. Des travaux antérieurs ont porté sur les fractures de fondus de polymères [4, 5, 6] sans donner d'interprétation sur leur origine physique. Des fractures dans des fluides viscoélastiques constitués de tensioactifs (solutions de micelles géantes) ont aussi été observées pour des taux de déformations supérieurs à l'inverse du temps de relaxation viscoélastique [7]. Nous avons ici étudié la nucléation et la propagation de fractures dans des microémulsions connectées par des polymères téléchéliques de masse molaire 10 kg/mole. L'utilisation d'un fluide de Maxwell modèle permet de dégager et d'analyser les mécanismes impliqués dans le processus de fracturation. Si plusieurs caractéristiques des fractures de solides élastiques se retrouvent, des spécificités propres aux fluides enrichissent les interprétations et notre compréhension de la mécanique de la fracture.

Des fractures de microémulsions connectées (par des polymères téléchéliques de masse molaire 35 kg/mole) ont déjà été mises en évidence à la section 2, en géométrie de Hele-Shaw radiale. Cependant, cette situation expérimentale n'a pas permis de mesurer les déformations et les contraintes pour lesquelles les fractures apparaissent. Nous présentons ci-dessous trois dispositifs expérimentaux permettant de mesurer les contraintes critiques de fracturation.

#### 6.1.1 Fracture sous cisaillement pur

Lorsqu'une microémulsion connectée est cisailée en régime permanent, par exemple en géométrie plan-plan avec des surfaces rugueuses pour éviter le glissement de l'échantillon sur les parties mobiles du rhéomètre, la contrainte de cisaillement augmente linéairement avec le taux de cisaillement, et la première

---

1. Expériences réalisées avec Grégoire Porte, Hervé Tabuteau et Manouk Abkarian, analyse effectuée en collaboration avec Christian Ligoure, Grégoire Porte, Hervé Tabuteau, Matteo Ciccotti et Chung-Yuen Hui. Nous avons publié les références [1, 2, 3] sur ce sujet.

différence de contrainte normale augmente quadratiquement (fig 6.1) :

$$\tau_{yz} = \mu\lambda\dot{b} \text{ et } N_1 = \tau_{zz} - \tau_{yy} = 2\mu\lambda^2\dot{b}^2. \quad (6.1)$$

Dans ces expressions,  $\mu$  est le module de cisaillement,  $\lambda$  le temps de relaxation, et  $\dot{b}$  le taux de cisaillement. Ce comportement, conforme aux prédictions du modèle de Maxwell convecté supérieur, s'interrompt brutalement lorsque le taux de cisaillement dépasse une certaine valeur, valeur critique qui dépend de la composition du fluide. Les contraintes diminuent ensuite fortement avec le taux de cisaillement, et l'observation de la surface de l'échantillon fait apparaître des fractures sur l'ensemble du pourtour (Fig. 6.1), fractures qui se développent au moment même où le taux de cisaillement critique est atteint. Les lèvres sont inclinées à 45 degrés de la direction du cisaillement, i.e., perpendiculairement à la direction d'élongation maximale associée au cisaillement. Cette observation entre en résonance avec une différence de contraintes normales bien plus grande que la contrainte parallèle au cisaillement lorsque l'évènement se produit. Ceci montre que ces fractures sont une conséquence de l'élongation. Elles marquent la fin du comportement maxwellien des fluides : elles se produisent alors que le matériau répond encore comme un élastique néo-hookéen aux temps courts. Ce point sera déterminant dans la suite.

La valeur de la contrainte de fracturation s'obtient en calculant la composante de contrainte élongationnelle perpendiculaire à la direction de propagation. Notons que le matériau cicatrise quelques secondes après l'arrêt du cisaillement, quelques bulles d'air restant piégées dans le volume.

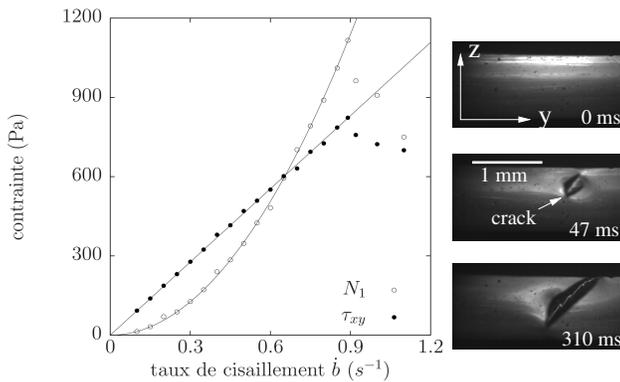


FIGURE 6.1 – Contrainte de cisaillement ( $\tau_{yz}$ ) et première différence de contraintes normales ( $N_1$ ) en fonction du taux de cisaillement ( $\dot{b}$ ) en régime permanent, mesurées pour une microémulsion connectée ( $\phi = 10\%$ ;  $r = 9$ ) en géométrie plan-plan. Les lignes continues sont des ajustements (modèle de Maxwell convecté supérieur) portant sur le module de cisaillement et le temps de relaxation (ici,  $\mu = 1040$  Pa et  $\lambda = 0,9$ s). Le développement d'une fracture est visible sur les clichés : elle apparaît pour un taux de cisaillement égal à  $0,9$   $s^{-1}$ , la contrainte normale vaut alors  $N_1 = 1190$  Pa.

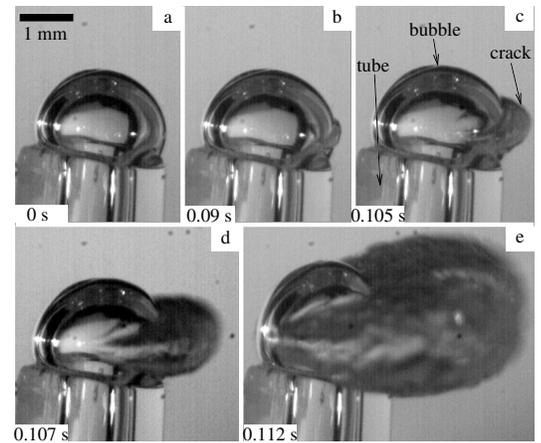


FIGURE 6.2 – Une bulle d'air est injectée, sous pression contrôlée (ici, de 2000 Pa), au sein d'une microémulsion connectée ( $\phi = 10\%$ ;  $r = 9$ ). Une fracture plane en forme de disque apparaît à la surface de la bulle (b), et se propage dans l'échantillon (c,d,e). La valeur de la pression critique au delà de laquelle une telle fracture se forme est 1800 Pa, ce qui conduit, après soustraction de la pression de Laplace ( $\sim 160$  Pa), à une contrainte critique de 1640 Pa.

## 6.1.2 Fracture par injection de gaz

Lorsqu'un gaz est injecté dans une microémulsion connectée sous une pression donnée par une aiguille de seringue ou par un tube capillaire, une bulle se forme et grossit lorsque la surpression est inférieure à un certain seuil. Si elle est supérieure à ce seuil, le gaz traverse l'échantillon rapidement, en l'ouvrant suivant une surface plane mais d'apparence rugueuse (Fig. 6.2). La fracture se résorbe spontanément si l'injection

cesse, laissant sur son passage quelques bulles.

La contrainte exercée par un gaz sous pression à la surface d'une bulle est exactement égale à la surpression diminuée de la pression de Laplace  $2\gamma/R$ ,  $R$  étant le rayon. Ce dernier terme diminue au fur et à mesure que la bulle se développe, entraînant une augmentation progressive de la contrainte. Ainsi, pour des valeurs de la surpression légèrement supérieures au seuil, la fracture se développe lorsque la bulle de gaz grandit (la figure 6.2 l'illustre).

Nous avons déterminé pour des microémulsions de compositions différentes, à partir de la valeur imposée de la surpression et de la mesure du rayon de la bulle où la fracture apparaît, la valeur critique de la contrainte de fracturation. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles obtenues sous cisaillement pour les mêmes fluides.

### 6.1.3 Gouttes pendantes

Un filament de fluide étiré par la gravité subit une déformation quasi-élongationnelle. Nous avons filmé l'écoulement libre de filaments de microémulsions connectées. Dans ces expériences, une goutte de fluide de  $50\mu L$  est formée dans l'air, à l'extrémité d'un tube de 2,6 mm de diamètre, orienté vers le bas. La tension de surface stabilise cette goutte vis-à-vis de la gravité. Un pousse seringue poursuit l'injection de fluide viscoélastique avec un débit de  $2 mL/s$ . Le volume de la goutte augmentant, la tension de surface ne suffit plus, et un écoulement gravitationnel prend place. Le filament de liquide ainsi formé s'allonge lentement et progressivement, et son rayon diminue (Fig. 6.3). La contrainte supportée par une zone donnée du fluide (contrainte égale au rapport entre le poids du fluide situé en dessous et la section du filament) augmente dans le temps. Une fracture apparaît à un certain moment et à un certain endroit du filament. Le filament se sépare en deux morceaux, la partie du bas chute librement, la partie du haut, qui est restée attachée au tube, se rétracte sous l'effet des forces élastiques. La fracture se forme à l'endroit du filament où la contrainte est maximale. Nous avons déterminé cette contrainte en calculant le rapport entre le poids de la partie détachée (mesuré avec une balance) et la section du filament à l'endroit où il casse, juste avant la rupture (utilisation d'une caméra rapide). L'imprécision de la mesure de la contrainte est inférieure à 5%.

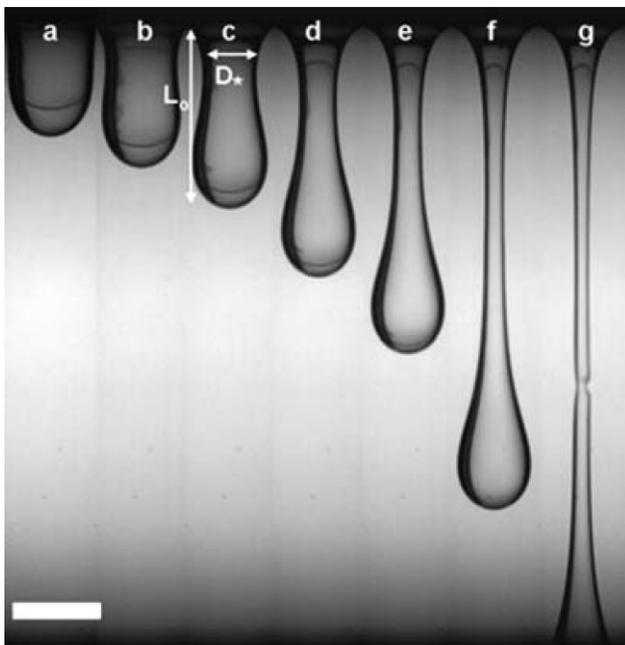


FIGURE 6.3 – Séquence d'images montrant l'étirement d'un filament de microémulsion connectée ( $\phi = 6\%$ ;  $r = 6$ ) à des intervalles de temps réguliers (2 secondes entre chaque image). La fracture se produit à l'image (g). La barre d'échelle blanche correspond à une longueur de 2,5 mm.

Les valeurs des contraintes de rupture mesurées par ces expériences de gouttes pendantes sont reproductibles, et en accord avec les mesures réalisées avec les dispositifs des sections 6.1.1 et 6.1.2. Nous avons

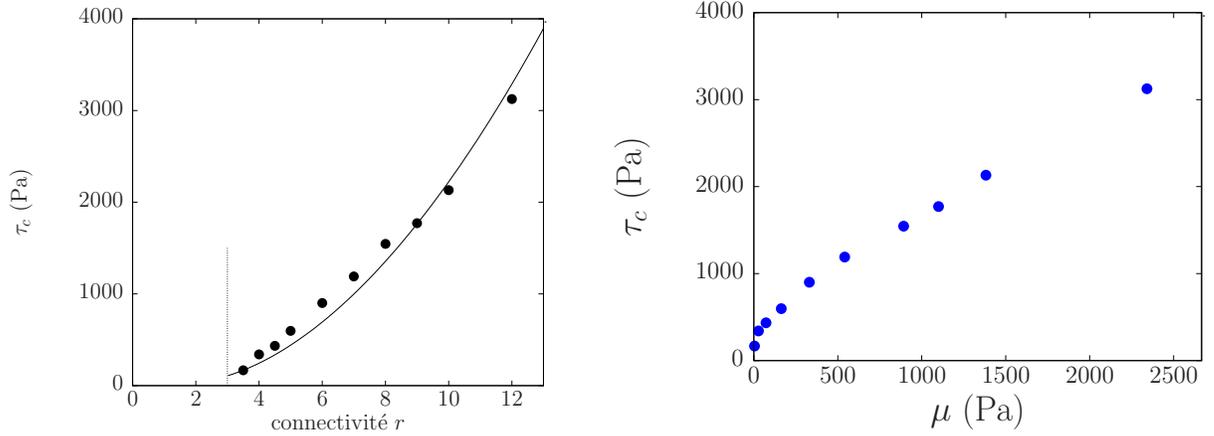


FIGURE 6.4 – Contrainte critique, mesurée par des expériences de gouttes pendantes, en fonction de la connectivité (à gauche) et du module de cisaillement (à droite). Les courbes sont tracées à partir des expressions (6.6) et (6.7) en prenant  $f = 0.5$  et en ajustant la valeur de  $\alpha$  :  $\alpha = 0.9$ , ce qui est, comme attendu, une valeur proche de 1. Le seuil de percolation correspond à  $r \simeq 3$ .

tracé (Fig. 6.4) la valeur de la contrainte seuil, mesurée par la méthode de la goutte pendante, en fonction de la connectivité des microémulsions connectées (la fraction volumique est fixée à  $\phi = 10\%$ ).

## 6.2 Nucléation

Une fracture est fragile lorsqu'elle se développe dans un matériau dont le comportement est élastique jusqu'à la rupture. Par opposition, un matériau ductile a un comportement plastique à l'approche de la rupture, plasticité associée à des déformations irréversibles. Un fluide n'est-il pas un matériau infiniment plastique, dans la mesure où il peut s'écouler comme bon lui semble sur une durée suffisamment longue en dissipant de l'énergie ? Nous allons montrer ci-dessous que la fracture des microémulsions connectées, qui sont bien des fluides, est une fracture fragile : les fractures se développant sur des temps beaucoup plus courts que le temps de relaxation viscoélastique, seule la réponse élastique est sondée (et non la réponse visqueuse).

La théorie de Griffith de la fracture fragile est basée sur la pré-existence de micro-fissures dans un matériau élastique, et sur la compétition entre l'énergie élastique libérée et le coût en énergie surfacique. Soit un objet élastique de module de cisaillement  $\mu$ , sur lequel une traction est appliquée avec la contrainte  $\tau$ . Le coût en énergie associé à une micro-fissure circulaire de diamètre  $L$  est (Fig. 6.5) :

$$W_\tau(L) = \frac{\pi}{2} L^2 F_s - \alpha \frac{\pi L^3 \tau^2}{2\mu}, \quad (6.2)$$

où  $F_s$  est l'énergie de cohésion ramenée à l'unité de surface, et où  $\alpha$  est un coefficient numérique proche de l'unité. Le premier terme du membre de droite correspond à l'énergie libre nécessaire pour rompre les liens de part et d'autre de la surface de fracture, le second correspond à l'énergie élastique libérée lorsque le matériau profite de la liberté apportée par la fracture pour s'accommoder de la contrainte extérieure.  $W_\tau$  atteint son maximum,

$$W_\tau^{max}(\sigma) = \frac{6\pi}{\alpha^2} \frac{F_s^3 \mu^2}{\tau^4}, \quad (6.3)$$

lorsque la taille de la micro-fissure vaut  $L_c(\tau) = \frac{6}{\alpha} \frac{F_s \mu}{\tau^2}$ . Pour des micro-fissures de tailles supérieures à  $L_c$ , nous observons que  $dW_\tau/dL < 0$  : ceci signifie qu'à une croissance de la micro-fissure est associée une libération d'énergie. La fissure s'accroît pour devenir fracture. Par contre, les micro-fissures de tailles inférieures à  $L_c$  ne se développent pas. Dans un solide fragile, les micro-fissures sont formées durant l'élaboration du matériau et sont irréversibles. Lors de l'application d'une contrainte de plus en plus intense, le

matériau casse lorsque la longueur de Griffith  $L_c(\tau)$  devient plus petite que la taille de la plus grande microfissure.

La situation est différente dans un réseau transitoire. Il s'agit d'un matériau dont les liaisons ne sont pas permanentes, s'établissant et se défaisant au gré de fluctuations auxquelles sont statistiquement associés des domaines vides de lien. Ces domaines jouent le rôle de microfissures (Fig. 6.6). Elles sont dans ce cas réversibles.

Yves Pomeau [8] a eu l'idée d'interpréter l'énergie calculée par Griffith (6.2) comme une barrière d'énergie de hauteur  $W_\tau^{max}$  (Fig. 6.5). La contrainte  $\tau$  étant appliquée au matériau, des fluctuations thermiques d'énergie sont susceptibles de permettre au système de franchir cette barrière au bout d'un certain temps d'attente. La fracture est donc thermiquement activée. La distribution des temps d'attente, calculée dans le cadre de la théorie de Kramers, suit une loi d'Arrhénius. La hauteur de la barrière variant comme  $1/\tau^4$ , le temps d'attente a pour expression  $t_w = t_0 \exp\left(\frac{t_0}{\tau}\right)^4$ , où  $\tau_0$  est une contrainte caractéristique pouvant s'exprimer à partir de  $W_\tau^{max}$ . Cette théorie a été testée pour des matériaux solides : des microcristaux bidimensionnels [9], des gels chimiques [10] et d'autres matériaux hétérogènes [11]. L'accord est qualitatif : le temps d'attente semble bien varier comme prédit, mais la valeur calculée du préfacteur ne correspond pas aux mesures. L'explication de ces écarts vient de ce qu'une fluctuation d'énergie est liée à une fluctuation de taille d'une microfissure par la relation (6.2). Les fluctuations d'énergie pouvant être positives ou négatives, la taille des fissures peut croître ou décroître : le matériau doit être auto-cicatrisant, comme le sont les fluides complexes et contrairement aux solides.

L'ordre de grandeur des fluctuations d'énergie est comparable à la hauteur de la barrière de Griffith lorsque  $W_\tau^{max} \sim k_B T$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzman et  $T$  est la température. Cela définit la contrainte seuil  $\tau_c$  à partir de laquelle le matériau rompt sans temps d'attente. Cette contrainte vaut :

$$\tau_c = \left( \frac{6\pi F_s^3 \mu^2}{\alpha^2 k_B T} \right)^{1/4}. \quad (6.4)$$

L'énergie de cohésion  $F_s$  n'est pas une grandeur directement mesurable : les microfissures, qui consistent ici en des zones vides de polymères, baignent dans le liquide constitué d'eau et de gouttelettes d'huile.  $F_s$  est donc différent de la tension de surface avec l'air. Seuls les polymères contribuent à  $F_s$ . La figure 6.6 illustre le cas d'une fissure au sein d'une microémulsion connectée : aucun lien ne ponte les gouttelettes à travers la fissure (pointillés). L'espace des configurations des polymères présents sur les gouttelettes voisines de la fissure est donc réduit : ces polymères ont à disposition moitié moins de sites d'accueil. Leur nombre de configurations accessibles est approximativement divisé par deux. Le coût en énergie libre est donc de  $k_B T \ln(2)$  par polymère directement voisin de la fissure. L'énergie libre par unité de surface vaut donc :

$$F_s = \frac{fr}{2d^2} k_B T \ln(2), \quad (6.5)$$

où  $r$  est la connectivité du réseau,  $f$  est la proportion de polymères liants ( $f \simeq 0,5$  d'après [12]), et  $d$  est la distance centre à centre moyenne entre deux nœuds :  $d = (4\pi/3/\phi)^{1/3} r_0$  (avec  $\phi$ , fraction volumique des gouttelettes et  $r_0$ , leur rayon).  $F_s$  est de l'ordre de  $10 \mu N/m$ , soit plusieurs ordres de grandeur plus petit que la tension de surface du fluide avec l'air. Des équations (6.4) et (6.5) nous déduisons la valeur de la contrainte critique :

$$\tau_c = \left( \frac{1}{\pi\alpha^2} \left( \frac{3f \ln 2}{4} \right)^3 \phi^2 \frac{r^3}{r_0^6} \right)^{1/4} (3k_B T \mu)^{1/2}. \quad (6.6)$$

Le module de cisaillement d'un réseau de polymères vaut, loin du seuil de percolation,  $\mu = nk_B T$ , où  $n$  est le nombre de liens par unité de volume ( $n = 3\phi r f / (4\pi r_0^3)$ ). L'expression de la contrainte critique (6.6) se

simplifie en :

$$\tau_c \simeq \left( (3 \ln 2)^3 \frac{\pi}{4\alpha^2} r f \right)^{1/4} \mu. \quad (6.7)$$

Le préfacteur est un nombre sans dimension qui est, pour des valeurs habituelles des paramètres, proche de 1. Nous en concluons que, loin du seuil de percolation,  $\tau_c \sim \mu$  : la contrainte critique est donc de l'ordre de grandeur du module de cisaillement.

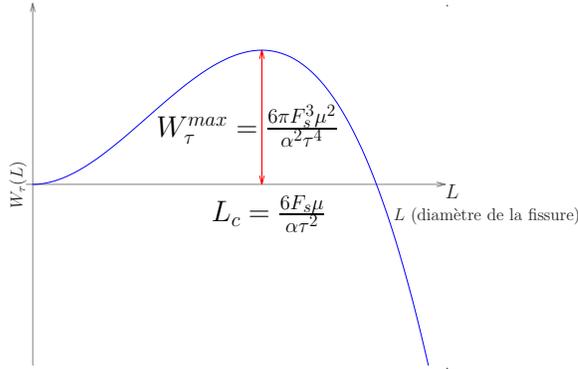


FIGURE 6.5 – Energie associée à une micro-fissure en forme de disque de diamètre  $L$  au sein d'un milieu élastique de module de cisaillement  $\mu$  soumis à la contrainte élongationnelle  $\tau$ .  $F_s$  est l'énergie (surfactive) de cohésion.

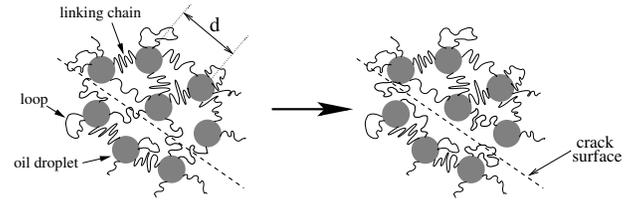


FIGURE 6.6 – Représentation d'une micro-fissure dans une microémulsion connectée : la micro-fissure est indiquée par des pointillées sur le schéma de droite : aucun lien ne joint des nœuds situés de part et d'autre de cette surface.

Les courbes de la figure 6.4 montrent que l'accord entre les valeurs de la contrainte critique issues des expériences des gouttes pendantes et les prédictions déduites de la théorie de la fracture thermiquement activée est bon, au moins en ordre de grandeur. La non linéarité observée pour les petits modules de cisaillement (Fig. 6.4, à droite) vient de la proximité du seuil de percolation (la relation de champ moyen  $\mu = nk_B T$  n'est alors pas valide).

L'expression de  $\tau_c$  ne fait intervenir ni temps de relaxation, ni viscosité. Seules les propriétés élastiques interviennent. Ceci constitue une prédiction forte du modèle de la fracture thermiquement activée, qui est en opposition avec les prédictions d'autres modèles (voir la section 7). Pour le vérifier, nous avons mesuré la contrainte critique en faisant varier la taille des extrémités hydrophobes des polymères téléchéliques, ce qui a pour effet de changer le temps de relaxation sans pour autant modifier le module de cisaillement. Aucune variation significative n'est apparue, même lorsque le temps de relaxation  $\lambda$  est augmenté d'un facteur 20.

Notons pour conclure que la longueur de Griffith  $L_c$  calculée à partir des valeurs du module de cisaillement et de  $F_s$  est environ trois fois plus grande que la distance moyenne entre gouttes, rendant l'image physique proposée cohérente.

### 6.3 Propagation

Nous avons montré à la section 6.2 que la théorie de la fracture thermiquement activée permet de décrire correctement la nucléation. Intéressons-nous maintenant à l'étape suivante, qui correspond à la déstabilisation du pont capillaire et à la propagation de la fracture. La fracture se traduit alors par le développement d'une interface entre le fluide et l'air. Son évolution a été filmée à l'aide d'une caméra rapide (Fig. 6.7). La forme de l'ouverture est présentée (Fig. 6.8). Nous avons ajusté aux images un profil parabolique de la forme :

$$u(x) = a\sqrt{x}. \quad (6.8)$$

Ces ajustements ont été effectués à différents instants de manière à obtenir l'évolution de la forme parabolique en fonction du temps. Ils ont été effectués pour des fractures de deux microémulsions connectées différentes, l'une avec une connectivité  $r = 6$  (module de cisaillement  $\mu = 330$  Pa), l'autre avec une connectivité  $r = 12$  ( $\mu = 2400$  Pa). La fraction volumique en gouttelettes d'huile est fixée à  $\phi = 10\%$ .

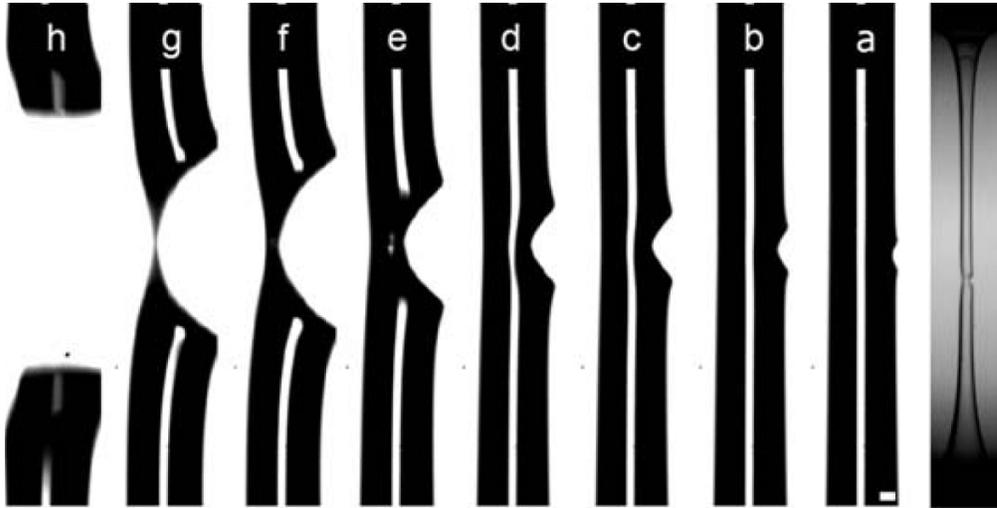


FIGURE 6.7 – Séquence d'images prises durant la propagation d'une fracture lors d'une expérience de gouttes pendantes de microémulsions connectées (ici de connectivité  $r = 6$  et de fraction volumique  $\phi = 10\%$ ). Les temps séparant la prise de vue (indiquée par une lettre) de la rupture sont (a) 8,50 ms ; (b) 5,16 ms, (c) 2,67 ms, (d) 2,00 ms, (e) 1 ms, (f) 0,33 ms, (g) 0,17 ms, (h) 0 ms. Le cliché de droite est une vue d'ensemble, où l'on distingue une fracture en train de progresser.

Les valeurs trouvées du préfacteur  $a$  (Eq. (6.8)) sont tracées à la figure 6.9 :  $a$  est constant sur une large gamme de temps, et finit par augmenter à l'approche du détachement complet. En ne considérant que la gamme de temps où la valeur de  $a$  est constante, nous avons trouvé les mêmes valeurs du rapport  $a^2\mu$  (où  $a$  et  $\mu$  sont issues respectivement de mesures de profils d'ouverture et de rhéologie) pour les deux microémulsions connectées ( $r = 6$  et  $r = 12$ ).

Une forme parabolique est attendue pour une fracture de solide. Elle s'explique, dans le cas présent, par un temps de propagation de la fracture ( $\sim 10$  ms pour parcourir la totalité du filament) bien plus court que le temps de relaxation viscoélastique du fluide ( $\lambda \sim 0,5$  s) : les effets visqueux n'apparaissent pas. Il faudrait, pour les observer, considérer un échantillon bien plus gros, de telle sorte que la fracture se propage sur des temps plus longs avant de l'avoir traversé.

D'après la théorie linéaire de la fracture élastique, la forme de l'ouverture d'une fracture dans un milieu élastique sous élongation homogène (« déformation plane ») a pour équation :

$$u(x) = \frac{K_I}{\mu} \sqrt{\frac{x}{2\pi}}, \quad (6.9)$$

où  $K_I$  est le facteur local d'intensité des contraintes. Irwin [13] a montré que  $K_I$  est lié au taux de restitution d'énergie  $G$  (i.e., l'énergie libérée par unité de surface créée) :  $G = K_I^2/(4\mu)$  lorsque les déformations élastiques sont infiniment petites. Nous obtenons ainsi la relation liant le préfacteur  $a$  (Eq. (6.8)) et  $G$  :

$$G = \frac{\pi\mu a^2}{2} \quad (\text{déformations élastiques infinitésimales}). \quad (6.10)$$

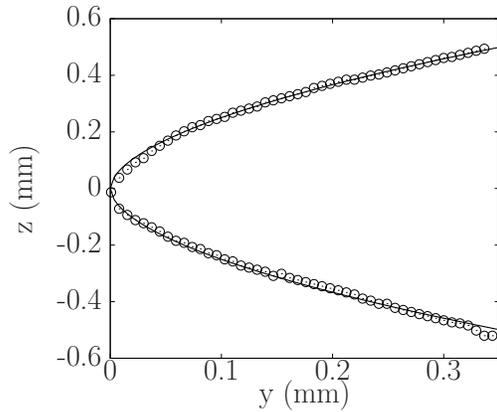


FIGURE 6.8 – Ouverture de la fracture, obtenue après digitalisation (image (d) de la figure 6.7), et ajustement d'une parabole sur ce profil.

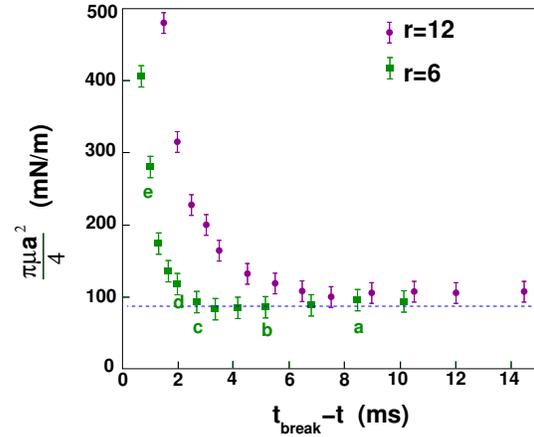


FIGURE 6.9 – Valeurs expérimentales de  $\pi a^2 \mu / 4$  en fonction du temps, où  $a$  est le préfacteur apparaissant dans l'expression (6.8) et  $\mu$  est le module élastique mesuré. Les valeurs de  $a$  ont été obtenues pour deux microémulsions connectées ( $r = 6$  et  $r = 12$ ), à différents instants  $t$  précédant la fracture qui intervient à l'instant  $t_{break}$ . Les lettres indiquent, lorsqu'elle existe, la photo correspondante de la figure 6.7.

Or, il a été montré que la fracture des matériaux utilisés dans cette étude se produit pour des contraintes qui sont du même ordre de grandeur que le module de cisaillement. Les déformations ne sont donc pas infinitésimales et l'expression de  $G$  écrite ci-dessus ne s'applique pas. Un calcul complet d'élasticité finie est donc nécessaire. En utilisant le modèle du solide néo-hookéen (Sec. 1.1.2) et en calculant l'intégrale  $J$  de Rice [14], le taux de restitution de l'énergie vaut [15, 3] :

$$G = \frac{\pi \mu a^2}{4} \quad (\text{déformations finies}). \quad (6.11)$$

L'équation (6.9), établie en supposant que les déformations sont infinitésimales, conduit à une singularité (déformation infinie) en  $x = 0$ . A cette singularité est associée une zone d'extension trop petite pour être décrite par la mécanique des milieux continus. Le comportement du matériau dans cette zone, souvent associée à de la dissipation, n'est a priori pas élastique. Par contre, l'extérieur de cette zone est décrit par la théorie de l'élasticité infinitésimale. Ceci conduit à l'expression (6.9).

La situation menant à l'expression (6.11) est différente dans la mesure où la zone proche de la pointe, modélisée dans le cadre de la théorie de l'élasticité finie, n'a plus lieu d'être traitée séparément. L'équation (6.11) donne donc la forme de l'ouverture lorsque la mécanique des milieux continus s'applique sur la totalité du matériau (et en supposant que le matériau est un solide néo-hookéen). Les expressions (6.10) et (6.11) se rapportent donc à deux situations distinctes.

Les courbes tracées à la figure 6.9 montrent que la valeur du rapport  $\pi \mu a^2 / 4$  est proche de  $90 \text{ mN/m}$  lorsque la fracture commence à se développer. Cette valeur augmente lorsque la fracture avance (i.e., lorsque  $t_{break} - t$  diminue) et qu'elle a parcouru un peu plus du quart du diamètre du filament. Dans ce cas, la symétrie bidimensionnelle n'est plus de mise. La partie pour laquelle  $\pi \mu a^2 / 4 \simeq 90 \text{ mN/m}$  peut, en première approximation, être décrite par une approche bidimensionnelle, comme celles conduisant aux expressions (6.10) ou (6.11). La tension de surface des fluides étant de l'ordre de  $45 \text{ mN/m}$ , nous obtenons  $\pi \mu a^2 / 4 \simeq 2\gamma$ . L'expression (6.11) conduit donc à  $G \simeq 2\gamma$ , comme attendu pour une fracture fragile se propageant à faible vitesse [16, 17] (la vitesse de propagation est de l'ordre de  $2 \text{ mm/s}$ , alors que la vitesse de Rayleigh  $\sqrt{\mu/\rho}$ , où  $\rho$  est la masse volumique du fluide, est de l'ordre du mètre par seconde). Ces fractures de microémulsions

connectées constituent donc bien une situation expérimentale de fracture fragile où l'extension de la zone en pointe de fracture est non microscopique et peut-être ainsi décrite par la mécanique des milieux continus, à condition de tenir compte du caractère fini des déformations élastiques.

Notons que le rayon de courbure  $R_c$  en pointe de fracture vaut  $a^2/2$  soit, d'après (6.11) :

$$R_c = \frac{4}{\pi} \left( \frac{\gamma}{\mu} \right). \quad (6.12)$$

Le rayon de courbure est donc égal (à un facteur numérique proche de 1 près) à la longueur élasto-capillaire, grandeur dont le rôle essentiel a été souligné aux sections 3, 4 et 5. Les effets hyperélastiques en pointe de fracture (Eq. (6.11)) sont donc à prendre en compte lorsque la longueur élasto-capillaire est pertinente à l'échelle de la mécanique des milieux continus. Nous venons de mettre en évidence une propriété supplémentaire des matériaux mous, i.e., des matériaux pour lesquels  $\gamma/\mu$  n'est pas microscopique.

## 6.4 Conclusions et perspectives

Le modèle de la fracture thermiquement activée d'une part, et l'analyse de la forme de l'ouverture lors de la propagation d'autre part, montrent que la fracture de réseaux transitoires modèles est de nature fragile. Elle apparaît pour des contraintes où le matériau est bien décrit par le modèle de Maxwell convecté supérieur, modèle qui s'identifie au modèle du solide néo-hookéen pour des temps caractéristiques bien plus faibles que le temps de relaxation du fluide. Compte-tenu de la vitesse de propagation des fractures et des distances parcourues, les temps mis en jeu dans les expériences sont inférieurs au temps de relaxation.

Nous souhaitons maintenant étudier ces fractures dans des géométries autorisant des propagations se produisant sur des durées plus longues. Les fractures se développant en cellule de Hele-Shaw ou lorsque le support sur lequel se trouve déposé l'échantillon est étiré (dispositif de la section 4.2.3 utilisé en traction) devraient permettre d'étudier les effets de la viscoélasticité sur la propagation. Le modèle de la trompette viscoélastique de de Gennes [18, 19, 20, 21] prédit une ouverture en forme de trompette :

- en  $x^{1/2}$  proche de la pointe, lorsque la distance  $x$  qui sépare la pointe de l'endroit considéré est inférieure au produit de la vitesse de propagation et du temps de relaxation,
- en  $x^{3/2}$  lorsque cette distance est plus grande.

Les expériences ayant montré que la présence de déformations élastiques d'amplitudes finies modifie quantitativement l'ouverture parabolique dans le régime élastique, qu'en est-il du comportement en  $x^{3/2}$  ?

Les fluides utilisés dans ces expériences sont des réseaux transitoires modèles, ne présentant ni rhéofluidification, ni rhéoépaississement : un écoulement ne modifie pas leur structure. D'autres réseaux transitoires ont un comportement plus complexe. Par exemple, la structure de solutions semi-diluées de micelles géantes change sous l'effet d'une contrainte (section 1.2.2). Ce changement permet au matériau de s'accommoder aux fortes contraintes. Il est associé à un coût d'énergie libre. Il peut se produire (ou se poursuivre) lors de la nucléation d'une fracture. Les caractéristiques de la fracture seront alors modifiées (voir la figure 6.10 où sont comparées des fractures de solutions de micelles géantes et de microémulsions connectées dans des situations identiques). Nous souhaitons étudier l'effet d'un tel changement de structure sur le processus de fracturation (de la nucléation à la propagation), ce qui devrait nous conduire à définir, pour un fluide complexe, l'analogue de la ductilité des solides. Les observations et les mesures seront faites de la même manière qu'avec les microémulsions connectées, y compris par l'utilisation des nouveaux montages. Nous avons développé des fluides complexes nouveaux [22] permettant de passer continûment d'un fluide fragile à un fluide « ductile » : il s'agit d'une dispersion de micelles connectées par des polymères téléchéliques. Ces micelles sont formées à partir d'un mélange de tensioactifs et de cotensioactifs dont les proportions changent d'un échantillon à

l'autre. Ceci permet d'obtenir des micelles dont la forme varie, de la sphère au cylindre. Lorsque ces objets deviennent allongés, ils sont susceptibles de s'organiser différemment en fonction de la contrainte appliquée.



FIGURE 6.10 – Expériences de gouttes pendantes réalisées dans les mêmes conditions (diamètre d'ouverture de 8 mm) pour deux fluides viscoélastiques de Maxwell ayant les mêmes propriétés rhéologiques linéaires (modules de cisaillement et temps de relaxation identiques) : microémulsion connectée à gauche et solution de micelles géantes à droite. Une fracture apparaît dans les deux cas. Le diamètre du filament de micelles géantes est plus petit car la fracture se développe bien plus bas. Les formes sont différentes : cassure nette à gauche, cassure plus « filamenteuse » à droite.

## Bibliographie

- [1] H. Tabuteau, S. Mora, G. Porte, M. Abkarian, and C. Ligoure. Ductility versus brittleness in self-assembled transient networks. *Progress of theoretical physics*, 175 :47–53, 2008.
- [2] H. Tabuteau, S. Mora, G. Porte, M. Abkarian, and C. Ligoure. Microscopic mechanisms of the brittleness of viscoelastic fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :155501–155504, 2009.
- [3] H. Tabuteau, S. Mora, M. Ciccotti, C.Y. Hui, and C. Ligoure. Propagation of brittle fracture in a viscoelastic fluid. *Soft Matter*, 7 :9474 – 9483, 2011.
- [4] J.F. Hutton. Fracture of liquids in shear. *Nature*, 200 :646, 1963.
- [5] A.Y. Malkin and C.J.S. Petrie. Some conditions for rupture of polymer liquids in extension. *J. Rheol.*, 41 :1, 1997.
- [6] H. Mizunuma and H. Takagi. Cyclic generation of wall slip at the exit of the plane couette flow. *J. Rheol.*, 47 :737, 2003.
- [7] J.R. Gladden and A. Belmonte. Motion of a viscoelastic micellar fluid around a cylinder : Flow and fracture. *Physical review letters*, 98 :224501, 2007.
- [8] Y. Pomeau. Brisure spontanée de cristaux bidimensionnels courbés. *C. R. Acad. Sci. Ser.*, 314 :553, 1992.
- [9] L. Pauchard and J. Meunier. Instantaneous and time-lag breaking of a 2-dimensional solid rod under a bending stress. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :3565–3568, 1993.
- [10] D. Bonn, H. Kellay, M. Prochnow, K. Ben-Djemaa, and J. Meunier. Delayed fracture of an inhomogeneous soft solid. *Science*, 280 :265–267, 1998.

- [11] A. Guarino, S. Ciliberto, A. Garcimartin, M. Zei, and R. Scorretti. Failure time and critical behaviour of fracture precursors in heterogeneous materials. *Eur. Phys. J. B*, 26 :141–151, 2002.
- [12] V. Testard, J. Oberdisse, and C. Ligoure. Monte-Carlo simulations of colloidal pair potential induced by telechelic polymers : Statistics of loops and bridges. *Macromolecules*, 41 :7219–7226, 2008.
- [13] G.R. Irwin. *J. Appl. Mech.*, 24 :361–364, 1957.
- [14] J. Rice. *J. Appl. Mech.*, 35 :379–386, 1968.
- [15] C.Y. Huy, A. Jogata, S.J. Bennison, and J.D. Londono. *Proc. R. Soc. London Ser. A*, 459 :1489–1516, 2003.
- [16] A.N. Gent and J. Shultz. *J. Adhes.*, 3 :281, 1972.
- [17] E.H. Andrews and A. Kinloch. *J. Proc. R. Soc. (London)*, 401 :A332–385, 1973.
- [18] Saulnier F., Ondarçuhu T., and A. Aradian. *Macromolecules*, 37 :1067–1075, 2004.
- [19] P.G. de Gennes. *CR. Acad. Sci. Paris Serie II*, 307 :1949, 1988.
- [20] P.G. de Gennes. *Langmuir*, 12 :4497–4500, 1996.
- [21] E. Raphael and P.G. de Gennes. *J. Phys. Chem.*, 96 :4002, 1992.
- [22] T. Texier, H. Tabuteau, A. Carrière, and C. Ramos, L. ANS Ligoure. *Soft Matter*, 6 :2699, 2010.



# Chapitre 7

## Approche cinétique de la fracture de réseaux transitoires

### Résumé :

Nous<sup>1</sup> introduisons un modèle cinétique pour décrire la nucléation de fractures de réseaux transitoires. Les principaux ingrédients de ce modèle sont (i) que la durée de vie d'un lien du réseau élastique est d'autant plus courte que la tension de ce lien est forte ; (ii) que la durée nécessaire pour qu'un lien cassé se reconnecte est beaucoup plus petite que la durée de vie d'un lien actif. Ces deux hypothèses conduisent à l'existence d'un seuil de fracture. Ce seuil correspond au passage d'un régime diffusif à un régime diffusif inverse, où une homogénéité de densité est amplifiée.

### 7.1 Introduction

Nous avons montré à la section 6 que le modèle proposé par Yves Pomeau [2] de la fracture thermiquement activée permet de prédire, avec un bon accord, le seuil de contrainte de nucléation de fractures dans des microémulsions connectées. Les propriétés viscoélastiques de ces réseaux transitoires dépendent de la densité des nœuds du réseau, de la connectivité, et de la nature des polymères téléchéliques (par exemple des longueurs des parties hydrophiles et hydrophobes, de l'interaction des parties hydrophobes avec les nœuds du réseau, etc.).

Nous explorons dans ce chapitre un autre scénario pour expliquer la nucléation de la fracture, scénario basé sur des arguments cinétiques. S'il ne décrit par correctement les observations expérimentales rapportées à la section 6, il peut se révéler pertinent, comme nous allons le montrer, pour expliquer la nucléation de fractures dans des réseaux transitoires constitués de chaînes plus courtes et/ou d'extrémités présentant une hydrophobie plus forte que celles de nos expériences. Ce modèle est basé sur des arguments cinétiques, mettant en balance la cinétique de déconnexion de liens (rupture) et leur reconnexion. L'apport - par rapport à de précédents modèles [3, 4] - est la prise en compte de reconnexions, un ingrédient spécifique aux matériaux auto-adhésifs (qui se réparent d'eux-mêmes).

L'énergie libre d'adhésion  $\Delta G$  d'une extrémité hydrophobe d'un polymère dans une gouttelette d'huile dépend de sa taille. Compte-tenu de l'agitation thermique, la probabilité pour que l'énergie d'une extrémité soit suffisante pour franchir la barrière énergétique  $\Delta G$  et se détache ainsi d'un nœud pour en rejoindre un autre est non nulle. Conformément au modèle de Green et Tobolsky [5], le taux de détachement est égal à

$$\frac{1}{t_0} = \Omega \exp\left(-\frac{\Delta G}{k_B T}\right), \quad (7.1)$$

---

1. Travail réalisé avec l'aide de Grégoire Porte, et publié dans la référence [1].

où  $\Omega$  est une fréquence caractéristique de vibration,  $\Omega \simeq 10^8 - 10^{10}$  Hz.  $t_0$  est ainsi le temps moyen de résidence d'une extrémité hydrophobe dans un noeud. Dans le but de décrire les propriétés rhéologiques non-linéaires de réseaux transitoires et en s'inspirant de la théorie cinétique d'Eyring [6, 7], Tanaka et Edwards [8] ont introduit une dépendance du temps de résidence avec la tension de la chaîne polymérique : la barrière d'énergie  $\Delta G$  est diminuée du travail mécanique résultant de la tension lors du désengagement de l'extrémité. La durée moyenne de résidence est alors :

$$t_i = \Omega \exp\left(\frac{(\Delta G - f_i a)}{kT}\right) = t_0 \exp\left(-\frac{f_i a}{k_B T}\right), \quad (7.2)$$

où  $f_i$  est la force exercée par le polymère et  $a$  la longueur sur laquelle la force agit lors du désengagement.  $a$  est de l'ordre de grandeur de la taille d'une extrémité hydrophobe.

Se basant sur l'expression (7.2), Tanaka et Edward ont modélisé le comportement mécanique de réseaux transitoires sous différentes déformations (cisaillements oscillants, sauts de déformation, taux de cisaillements constants)[9, 10, 11], mettant en évidence des comportements non linéaires observés expérimentalement (rhéofluidification, diminution du temps de relaxation pour des grands sauts de déformation [12], etc.). Le modèle proposé par Tanaka et Edwards étant basé sur une hypothèse de champ moyen (déformation affine du réseau), il n'est pas en mesure de prédire des phénomènes localisés comme des fractures.

## 7.2 Modèle unidimensionnel

### 7.2.1 Présentation du modèle

Nous présentons dans un premier temps un modèle minimal qui reprend les ingrédients physiques de l'approche plus complète de la section 7.3. Considérons le réseau dessiné à la figure 7.1 :  $N + 1$  plans parallèles, numérotés de 1 à  $N + 1$ , sont connectés par des ressorts identiques, de longueur à vide  $l_0$  et de raideur  $k$ . Nous notons  $n_i$  le nombre de ressorts situés dans la tranche  $i$ , comprise entre les plans  $i$  et  $i + 1$ . En l'absence de traction ou de compression, l'épaisseur de chaque tranche vaut  $l_0$  (les effets venant de la gravité sont supposés négligeables). Dans ce modèle, nous supposons que chaque extrémité de ressort peut se déconnecter d'un plan, puis se repositionner sur un plan voisin de l'extrémité qui ne s'est pas détachée. Suivant ce processus, le nombre  $n_i$  de ressorts de la tranche  $i$  peut varier. Le nombre total de ressorts  $N_{spring} = \sum_{i=1}^N n_i$  est bien sûr conservé. Le nombre moyen de ressorts par tranche est  $N_{spring}/N$ .

Nous supposons dans la suite que la cinétique de déconnexion suit la relation (7.2), et qu'une extrémité libre se reconnecte instantanément. L'hypothèse d'une reconnexion instantanée est justifiée dès que le temps de Rouse de la chaîne polymérique est très inférieur à la durée moyenne de résidence d'une extrémité de polymère dans un noeud, ce qui est le cas dans les systèmes expérimentaux que nous souhaitons modéliser [13].

### 7.2.2 Réponse à un saut de contrainte

Supposons maintenant que le système soit soumis, à l'instant  $t = 0$ , à une force de traction notée  $F$  (Fig. 7.1). En négligeant les effets inertiels et en supposant le système de ressorts immergé dans un fluide visqueux (le solvant) qui amortit les oscillations, l'équilibre mécanique impose que chaque tranche se trouve soumise à cette même force  $F$ . Au sein de chaque tranche, cette force est partagée équitablement entre les ressorts. Les ressorts d'une tranche ayant un déficit de ressorts sont donc plus étirés que ceux d'une tranche présentant un excès. Ainsi, d'après l'équation (7.2), les ressorts de la tranche en déficit ont une durée de vie inférieure.

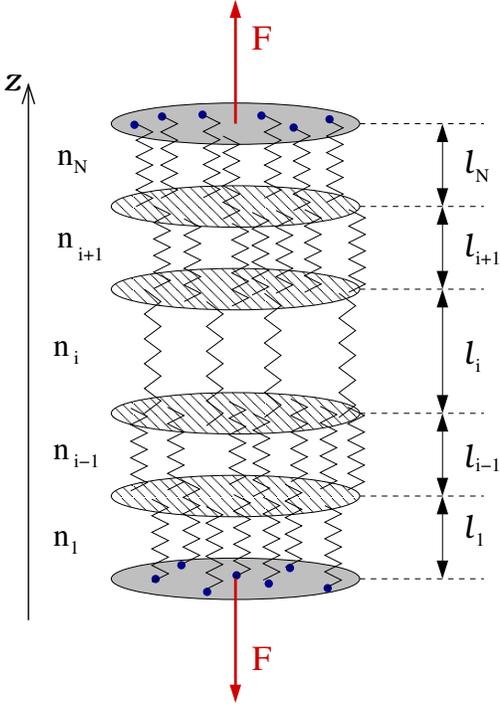


FIGURE 7.1 – *Modèle unidimensionnel comportant  $N$  tranches. La tranche  $i$  est composée de  $n_i$  ressorts. Ces ressorts, montés en parallèle, sont liés en série aux ressorts des tranches  $i - 1$  et  $i + 1$ . Tous les ressorts sont identiques. Les ressorts peuvent migrer d'une tranche à l'autre lorsqu'une de leur extrémité s'est déconnectée.*

Le nombre de liens de la tranche  $i$  qui ont rompu entre les instants  $t$  et  $t + dt$  est

$$\delta n_{i1} = \frac{n_i}{t_i} dt, \quad (7.3)$$

où  $t_i$  est défini par (d'après Eq. (7.2)) :

$$t_i = t_0 \exp\left(-\frac{Fa}{n_i k_B T}\right). \quad (7.4)$$

Un lien quittant la tranche  $i - 1$  peut, après reconnexion, se retrouver soit dans la tranche  $i$ , soit dans la tranche  $i - 2$ , avec la même probabilité  $1/2^2$ . Puisque l'on suppose que les ressorts se reconnectent instantanément, le nombre de ressorts arrivant entre les instants  $t$  et  $t + dt$  dans la tranche  $i$  est donc :

$$\delta n_{i2} = \frac{1}{2} \frac{n_{i-1}}{t_{i-1}} dt + \frac{1}{2} \frac{n_{i+1}}{t_{i+1}} dt. \quad (7.5)$$

La variation du nombre de liens de la tranche  $i$  pendant  $dt$  vaut  $dn_i = -\delta n_{i1} + \delta n_{i2}$ . Nous obtenons donc, pour  $2 \leq i \leq N - 1$  :

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{1}{2} \left[ \left( \frac{n_{i+1}}{t_{i+1}} - \frac{n_i}{t_i} \right) - \left( \frac{n_i}{t_i} - \frac{n_{i-1}}{t_{i-1}} \right) \right]. \quad (7.6)$$

Faisons l'hypothèse que les parois sont collantes, de telle sorte que les extrémités externes des ressorts des tranches 1 et  $N$  ne se déconnectent jamais. Le temps de vie moyen d'un lien de la tranche 1 (resp. de la tranche  $N$ ) est donc égal au double de  $t_1$  (resp.  $t_N$ ), où  $t_1$  est défini par (7.4). Nous en déduisons que :

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{1}{2} \left( \frac{n_2}{t_2} - \frac{n_1}{t_1} \right), \quad (7.7)$$

$$\frac{dn_N}{dt} = \frac{1}{2} \left( \frac{n_{N-1}}{t_{N-1}} - \frac{n_N}{t_N} \right). \quad (7.8)$$

2. Notons que le lien peut aussi se reconnecter dans la tranche  $i - 1$ . Le processus déconnexion/reconnexion ne joue alors aucun rôle ; par définition,  $dt/t_i$  est bien la probabilité pour que la reconnexion se fasse sur un autre site.

Les équations (7.6), (7.7) et (7.8) permettent, connaissant les populations initiales des tranches  $n_i(t=0)$ , de calculer l'évolution du nombre de ressorts de chaque tranche. Afin de résoudre ce système de N équations différentielles couplées du premier ordre, adimensionnons les variables. Posons :

$$y_i = \frac{n_i k_B T}{F a} \text{ et } \tilde{t} = t/t_0. \quad (7.9)$$

Nous obtenons, d'après (7.6) :

$$\frac{dy_i}{d\tilde{t}} = \frac{1}{2} \left[ \left( y_{i+1} e^{1/y_{i+1}} - y_i e^{1/y_i} \right) - \left( y_i e^{1/y_i} - y_{i-1} e^{1/y_{i-1}} \right) \right], \quad (7.10)$$

Eqs.(7.7) et (7.8) deviennent :

$$\frac{dy_1}{d\tilde{t}} = \frac{1}{2} \left( y_2 e^{1/y_2} - y_1 e^{1/y_1} \right), \quad (7.11)$$

$$\frac{dy_N}{d\tilde{t}} = \frac{1}{2} \left( y_{N-1} e^{1/y_{N-1}} - y_N e^{1/y_N} \right). \quad (7.12)$$

### 7.2.3 Analyse linéaire

Introduisons l'axe (0z) tel que l'abscisse du plan  $i$  en l'absence de force extérieure soit  $z = i l_0$  ( $l_0$  est la longueur à vide des ressorts) et définissons la fonction  $y(z; t)$  telle que  $y_i(t) = y(i l_0; \tilde{t})$ . En supposant que les variations de  $y_i$  se fassent sur des distances plus grandes que  $l_0$ , l'équation (7.10) devient :

$$\frac{\partial y}{\partial \tilde{t}} = \frac{1}{2} l_0^2 \frac{\partial^2 y e^{1/y}}{\partial z^2}. \quad (7.13)$$

Cherchons une solution de la forme

$$y(z; \tilde{t}) = y_0 + \epsilon f(z; \tilde{t}), \quad (7.14)$$

où  $y_0$  est une constante,  $\epsilon$  est petit et  $f(z; \tilde{t})$  est d'ordre 1. En ne retenant que l'ordre 1 en  $\epsilon$  dans l'équation (7.13), il reste :

$$\frac{\partial f}{\partial \tilde{t}} = \overbrace{\left[ l_0^2 e^{1/y_0} \left( 1 - \frac{1}{y_0} \right) \right]}{\equiv D} \frac{\partial^2 f}{\partial z^2} = D \frac{\partial^2 f}{\partial z^2}. \quad (7.15)$$

Deux cas se présentent :

- Si  $y_0 > 1$ , alors le coefficient  $D$  défini dans (7.15) est positif.  $f(z, \tilde{t})$  est solution d'une équation linéaire de diffusion. Le système évolue donc, quelle que soit la condition initiale (de la forme (7.14)) vers une solution  $y(z, t)$  spatialement homogène. Nous en concluons qu'une fluctuation de la répartition du nombre de ressorts dans les tranches se résorbe par diffusion. Le processus déstabilisant (diminution du temps de vie avec la tension d'un ressort) est dominé par la recombinaison, phénomène diffusif qui conduit à une homogénéisation.
- Si  $y_0 < 1$ , alors  $f(z, \tilde{t})$  est solution d'une équation linéaire de diffusion à coefficient de diffusion négatif. Cette diffusion inverse conduit à une amplification de n'importe quelle fluctuation de la répartition des ressorts.

Puisque  $y = \frac{n k_B T}{F a}$ , nous concluons que si  $F < \frac{n_0 k_B T}{a}$ , où  $n_0$  est le nombre moyen de ressorts par tranche, alors toute fluctuation de la densité du nombre de ressorts décroît dans le temps. Dans le cas contraire, les fluctuations sont amplifiées. Puisque nous avons supposé  $\epsilon \ll 1$ , il est nécessaire de mener une analyse à des ordres plus élevés pour conclure dans ce dernier cas.

### 7.2.4 Contrainte seuil

Nous considérons de nouveau un système discret composé de  $N$  tranches. L'état initial  $\{n_i(0)\}_N$  est choisi de telle sorte que les tranches contiennent le même nombre  $n_0$  de ressorts, sauf une, par exemple celle du milieu ( $N/2$ ) dont le nombre initial de ressorts vaut  $n_{N/2}(0) = n_0 - \Delta n$ . Donnons à  $\Delta n$  une valeur caractéristique pour une fluctuation statistique :  $\Delta n \simeq \sqrt{n_0} \ll n_0$ . Ceci revient à prendre comme conditions initiales pour les équations différentielles (7.10), (7.11) et (7.12) :

$$y_{N/2} = y_0 - y_0/\sqrt{n_0}; \quad y_{i \neq N/2} = y_0 \quad \text{avec} \quad y_0 = \frac{n_0 k_B T}{F a}. \quad (7.16)$$

Nous avons résolu numériquement ces équations différentielles avec cette condition initiale, en supposant que la force  $F$  est appliquée à l'instant  $t = 0$ .

- Si  $y_0 > 1$  alors le système évolue vers une homogénéisation de  $y_i$  : la fluctuation disparaît. Ce résultat est conforme à celui de la section 7.2.3 dans la mesure où, à tout instant, la fluctuation constitue une petite perturbation de l'état parfaitement homogène.
- Si  $y_0 < 1$  alors la fluctuation est amplifiée au cours du temps. Le nombre de ressorts évolue jusqu'à ce que celui de la tranche la moins dense s'annule : il n'y a alors plus de connexion entre les deux parties de l'échantillon, qui se trouve séparé en deux. Ceci montre que les termes non-linéaires qui n'étaient pas pris en compte à la section 7.2.3 prolongent le comportement diffusif inverse prédit à l'ordre linéaire.

En résumé, pour  $y_0 > 1$ , le matériau ne casse pas, sinon, il se casse en deux. D'après la définition de  $y_0$  (7.16), cela signifie qu'il existe une force critique  $F$  - au delà de laquelle une fracture se développe - définie par :

$$F_{break} = \frac{n_0 k_B T}{a}. \quad (7.17)$$

Cette force est proportionnelle au nombre moyen de ressorts par tranche : un matériau très connecté est plus résistant qu'un matériau ténu. Nous constatons aussi que cette force est inversement proportionnelle à  $a$ , de telle sorte que si  $a \rightarrow 0$  alors  $F_{break} \rightarrow \infty$  : le matériau ne cassera jamais. Cette situation correspond au cas où la durée de vie d'un lien est indépendante de la force appliquée sur ce lien (d'après Eq. (7.2)). Ceci met en lumière le mécanisme physique responsable de la fragilité du matériau : il s'agit de la diminution du temps de vie d'un lien sous tension.

Le nombre de ressorts de la tranche la moins dense ne s'annule pas instantanément (Fig. 7.2). Définissons le temps de rupture  $t_{break}$  par la durée qui s'écoule entre l'application de la force et la rupture. Ce temps dépend de la valeur de  $y_0$  (Fig. 7.3) : il est court lorsque  $y_0$  est proche de 0, c'est-à-dire lorsque la force est grande. Il augmente au fur et à mesure que  $y_0$  augmente (c'est-à-dire que la force diminue), et diverge lorsque  $y_0 \rightarrow 1^-$ . Notons que  $t_{break}$  dépend de l'amplitude de la fluctuation initiale, mais que l'allure des courbes reste inchangée lors d'un changement d'amplitude des fluctuations.

Les principaux résultats de cette étude sont : (i) la dépendance du temps de vie d'un lien avec la tension est à l'origine du phénomène de fracture observé dans ce modèle, (ii) il existe une force critique pour la fracture, (iii) la nucléation de la fracture prend un temps fini qui dépend de la force appliquée.

### 7.2.5 Réponse à un saut de déformation

Dans les sections précédentes (7.2.2, 7.2.3 et 7.2.4) nous avons considéré la situation où le système initialement à l'équilibre est soumis, à un instant donné, à une force maintenue constante. Considérons maintenant le cas où la déformation  $\epsilon$  est imposée à l'instant  $t = 0$ , puis maintenue constante. Cette déformation est définie par :

$$\epsilon = \frac{L - L_0}{L_0},$$

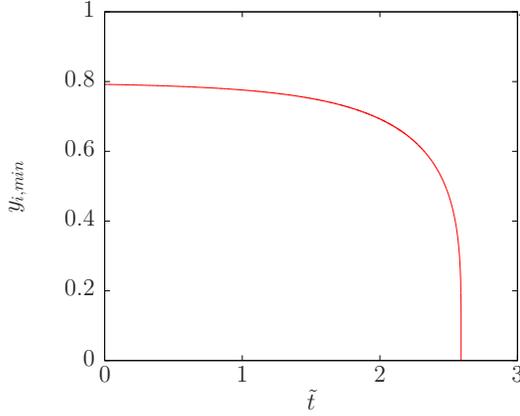


FIGURE 7.2 – Variation du nombre de ressorts de la tranche initialement la moins dense en fonction du temps, pour une valeur initiale  $y_0$  égale à  $0,8 < 1$  et une fluctuation négative de 1% pour la tranche centrale ( $N/2$ ). La diffusion inverse conduit à une amplification de cette fluctuation jusqu'à ce que la tranche soit complètement vide. Le temps de rupture pour cette valeur de  $y_0$  est  $t_{break} = 2,67t_0$ .

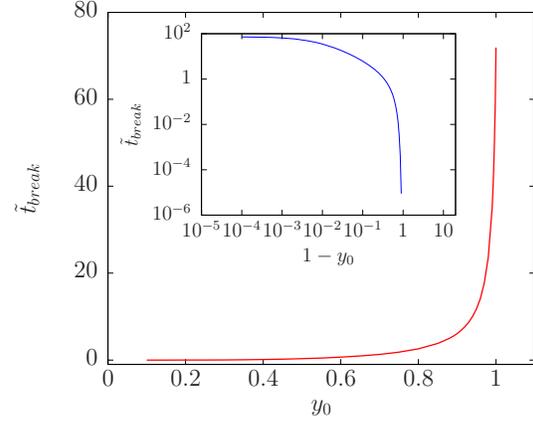


FIGURE 7.3 – Temps de rupture réduit  $\tilde{t}_{break}$  en fonction de  $y_0$ . Ce temps diverge à l'infini à l'approche du seuil ( $y_0 \rightarrow 1^-$ ). Il n'est pas défini pour  $y_0 > 1$ . Encart : mêmes données, mais tracées en échelles logarithmiques.

où  $L_0$  et  $L$  sont respectivement les longueurs initiale et finale du système. Soit  $F(t)$  la force qui doit être exercée sur le système afin d'établir puis maintenir cette déformation. La longueur d'un ressort de la tranche  $i$  est  $l_i = l_0 + \frac{1}{k} \frac{F}{n_i}$ . La longueur totale du système est donc  $L = L_0 + \frac{F}{k} \sum_j \frac{1}{n_j}$ . La durée de vie moyenne d'un lien de la tranche  $i$  est donc, d'après (7.2) :

$$t_i = t_0 \exp - (k\epsilon N l_0 a) / \left( k_B T n_i \sum_{j=1}^N \frac{1}{n_j} \right).$$

Définissons le paramètre sans dimension

$$\alpha = \epsilon \frac{k l_0 a}{k_B T}. \quad (7.18)$$

Les équations (7.6), (7.7) et (7.8) conduisent à un système couplé de  $N$  équations différentielles non linéaires du premier ordre. Nous l'avons résolu numériquement avec la condition initiale  $n_i(0) = n_0$  pour  $i \neq N/2$  et  $n_{N/2} = n_0(1 - 1/\sqrt{n_0})$ . Nous avons trouvé que :

- si  $\alpha < 1$  alors la fluctuation initiale du nombre de ressorts s'atténue puis disparaît,
- si  $\alpha > 1$  alors le système finit par se séparer en deux.

$\alpha = 1$  correspond à la déformation critique :

$$\epsilon_{break} = \frac{k_B T}{k l_0 a}. \quad (7.19)$$

Notons que  $\epsilon_{break} \rightarrow \infty$  pour  $a \rightarrow 0$  : aucune fracture n'est attendue pour une valeur finie de la déformation lorsque la durée de vie d'un lien est indépendante de la tension.

Le temps de rupture, défini ici comme la durée séparant l'application de la déformation et la rupture, est tracé Fig. 7.4 en fonction de  $\alpha - 1$ . Il est d'autant plus petit que  $\alpha$  est grand, i.e., que la déformation est grande. Il diverge à l'approche du seuil, i.e., lorsque  $\epsilon \rightarrow \epsilon_{break}^+$ .

La réponse du système à un saut de déformation est donc analogue, vis-à-vis de cette instabilité de rupture, à la réponse à un saut de contrainte. Notons que les seuils se correspondent exactement : la force initiale

nécessaire pour obtenir la déformation critique  $\epsilon_{break}$  est égale à  $n_0 k_B T / a$ , ce qui est précisément l'expression trouvée pour  $F_{break}$  lors de l'application d'un saut de contrainte. Ces deux situations sont physiquement équivalentes.

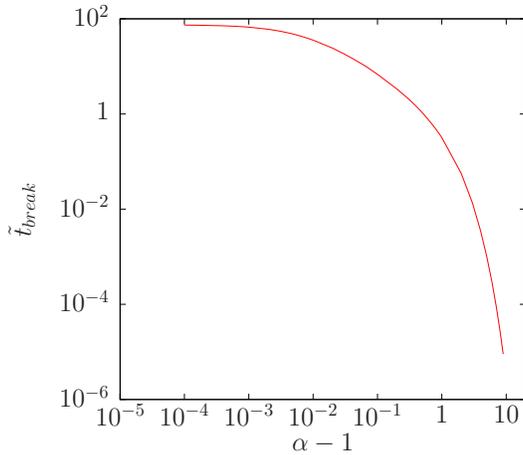


FIGURE 7.4 – Temps de rupture  $\tilde{t}_{break}$  en fonction du paramètre  $1 - \alpha$ , lorsque le système est soumis à un saut de déformation.

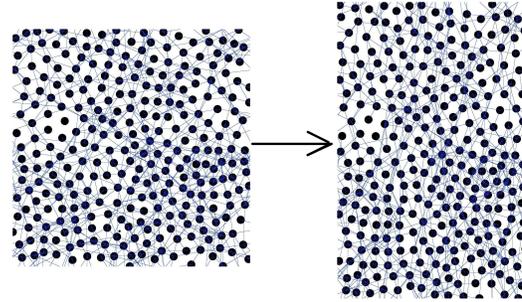


FIGURE 7.5 – Représentation du système, constitué de nœuds (disques noirs) connectés par des liens (segments noirs). Chaque nœud est à l'équilibre mécanique. La distribution des liens dans l'état initial (non déformé) est isotrope (à gauche). Elle devient fortement anisotrope après déformation (à droite).

Le mécanisme de l'instabilité est clairement apparu en considérant un système unidimensionnel. Le seuil d'instabilité ( $F_{break}$  ou  $\epsilon_{break}$ ) résulte de la compétition entre l'effet déstabilisant de la réduction du temps de vie d'un lien avec la tension, et de la diffusion des liens. Une analyse unidimensionnelle n'est pas suffisamment complète. En effet, la contrainte d'incompressibilité, et donc la pression, n'ont pas lieu d'être à une dimension, alors qu'elles prennent tout leur sens à deux dimensions. Les différences de contraintes normales ne peuvent pas non plus être définies, de telle sorte que l'étude de la relaxation de la contrainte élongationnelle, en réponse à un saut de déformation, n'a pas de sens, puisqu'elle ne peut être séparée de la pression [14]. Il nous a donc paru nécessaire, afin de valider la pertinence des conclusions issues du modèle unidimensionnel, de traiter le cas plus réaliste d'un réseau bidimensionnel. Peu de différences sont attendues du passage de 2 à 3 dimensions, dans la mesure où les aspects tensoriels ont tout leur sens à deux dimensions.

## 7.3 Réseau transitoire bidimensionnel sous élongation

### 7.3.1 Modèle

Pour généraliser les résultats de la section 7.2 à des réseaux bidimensionnels, nous modélisons la dynamique d'un réseau constitué d'un nombre donné de nœuds et de liens, liens dont la durée moyenne de vie est donnée par l'équation (7.2) et qui se reconnectent instantanément. Nous ne prétendons pas apporter une description complète de la dynamique et de la structure d'un réseau élastique sous tension. Le but est de proposer un modèle minimal faisant ressortir les ingrédients physiques importants vis-à-vis de la fracture. La situation à deux dimensions étant bien plus complexe qu'à une dimension, nous avons eu recours à des simulations numériques.

Considérons une assemblée de  $N$  disques impénétrables de rayon  $\rho$ , aléatoirement disposés dans une surface donnée. Un nombre prédéfini de liens relie ces disques, qui constituent les nœuds d'un réseau (Fig. 7.5). Afin de reproduire au mieux un réseau de polymères, les liens sont disposés suivant une distribution gaussienne (la variable étant la distance surface à surface entre disques). Ces liens agissent mécaniquement

comme des ressorts de longueur à vide nulle et de raideur  $k$ . Une force répulsive est introduite entre chaque paire de disques afin de rendre le système incompressible. Elle remplace la pression osmotique, absente de ce modèle. L'intensité décroît linéairement avec la distance surface à surface jusqu'à ce qu'elle s'annule, lorsque cette distance est supérieure à la distance moyenne entre disques. L'intensité de cette force est choisie de telle sorte que la densité d'équilibre du système soit égale à la densité voulue. Nous avons opté pour des conditions aux limites périodiques afin de s'affranchir d'effets de bords. Des simulations de dynamique moléculaire ont été introduites pour déterminer la dynamique et la structure d'équilibre (sans contrainte) de microémulsions connectées [15], systèmes que nous voulons modéliser ici sous forte contrainte. Les simulations de cette section décrivent ces systèmes de façon bien plus élémentaire, mais apportent une compréhension physique du processus de fracturation.

L'équilibre mécanique du système est atteint lorsque, pour une certaine distribution de liens entre les nœuds, la position de l'ensemble des nœuds minimise l'énergie élastique totale. La résultante des forces agissant sur chaque nœud est alors nulle. Notons que l'on suppose implicitement que le système baigne dans un solvant visqueux excluant toute oscillation. Le modèle unidimensionnel ayant montré qu'il n'y a pas de différence fondamentale entre une situation à déformation ou à contrainte imposée, nous avons choisi de n'étudier ici que la réponse à un saut de déformation. Une élongation macroscopique d'amplitude finie  $\Delta L/L = \epsilon$  est appliquée à l'instant  $t = 0$  à l'ensemble du réseau (Fig. 7.5). Une fois l'équilibre mécanique atteint, le tenseur des contraintes est calculé en sommant la tension supportée par chaque lien. La différence de contraintes normales  $\tau_{yy} - \tau_{xx}$  ( $y$  est la direction de l'élongation) est alors calculée.

A chaque pas de temps, le réseau est mis à l'équilibre mécanique, puis sa topologie est modifiée par le jeu de la rupture puis de la création d'un lien. Soit  $t_i$  la durée de vie moyenne du lien  $i$ .  $t_i$  dépend de l'étirement du lien par la relation (7.2). La probabilité pour que le lien  $j$  casse pendant la durée  $\sum_i t_i$  est égale à  $t_j / \sum_i t_i$ . Considérant un pas de temps d'une durée  $\sum_i t_i$ , nous avons choisi le lien à supprimer par un processus de Monté-Carlo tenant compte des probabilités de rupture de chaque lien. Une des deux extrémités (prise au hasard) reste connectée. L'autre se recombine à un autre nœud au hasard mais suivant une probabilité gaussienne. Suit une nouvelle mise à l'équilibre mécanique. L'anisotropie moyenne de la distribution angulaire des liens diminue au cours de ce processus puisque chaque nouveau lien se forme dans l'état déjà déformé. Ceci conduit à une diminution de la différence de contraintes normales.

### 7.3.2 Résultats

Nous avons calculé la différence de contraintes normales  $\tau_{yy} - \tau_{xx}$  en fonction du temps pour un saut de déformation d'élongation  $\epsilon$ . Nous observons une décroissance exponentielle lorsque  $\epsilon$  est faible (Fig. 7.6,  $\epsilon = 2$ ), au cours de laquelle l'anisotropie des liens diminue progressivement jusqu'à s'annuler. La distribution des positions des liens et des nœuds reste homogène durant toute la relaxation de la contrainte. Un changement spectaculaire apparaît pour les élongations supérieures à une valeur critique : la différence de contraintes normales décroît de plus en plus rapidement, et finit par s'annuler en un temps fini (Fig. 7.6,  $\epsilon = 5$ ). L'analyse de la distribution spatiale des liens et des nœuds montre que le réseau est alors séparé en deux domaines non connectés. La contrainte n'est donc plus transmise de part et d'autre de l'échantillon (Fig. 7.8). La densité de nœuds dans chaque morceau est alors supérieure à la densité d'équilibre. En laissant le système évoluer, la densité retrouve sa valeur d'équilibre, les deux parties se rapprochent et des liens recommencent à les ponter : le système est en train de cicatriser.

La valeur de la déformation critique est indépendante de la connectivité du réseau (i.e., du nombre moyen de liens par nœuds), un résultat analogue à ce qui a été établi avec le modèle unidimensionnel : le nombre moyen de ressorts par tranche n'intervient pas dans l'expression de la déformation critique  $\epsilon_{break}$  (7.19).

Le temps qui s'écoule entre l'application de la déformation et la séparation du système en deux morceaux

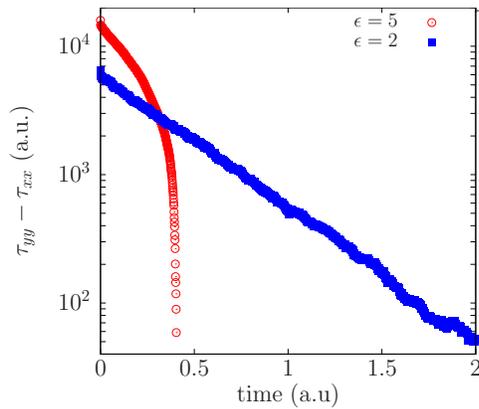


FIGURE 7.6 – Différence de contraintes normales  $\tau_{yy} - \tau_{xx}$  en fonction du temps en réponse à des sauts de déformation, pour un réseau constitué de 1 000 nœuds, avec 8 liens par nœuds en moyenne. Pour la valeur de  $a$  choisie dans ces simulations (Eq. (7.2)), la contrainte décroît exponentiellement lorsque l'élongation imposée est inférieure à  $\epsilon \simeq 4,2$ . Sinon, elle s'annule au bout d'un temps fini.

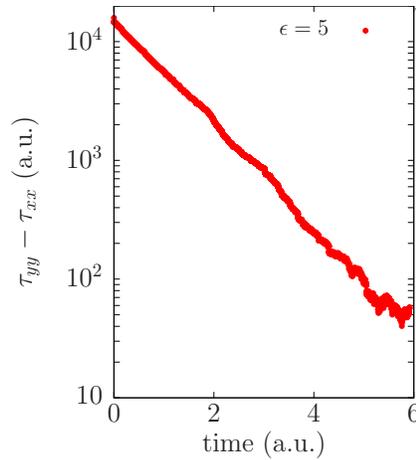


FIGURE 7.7 – Différence de contraintes normales en fonction du temps, en réponse à un saut de déformation  $\epsilon = 5$ . Le système comporte 1 000 nœuds, et 8 liens par nœuds. Dans cette simulation, le temps de vie d'un lien est indépendant de la tension (ce qui revient à prendre  $a = 0$  dans (7.2)). La différence de contraintes normales décroît exponentiellement et le système reste homogène (pas de séparation).

est d'autant plus long que l'élongation  $\epsilon$  est loin du seuil. Nous n'avons pas pu étudier quantitativement la dépendance de ce temps avec  $\epsilon$  : si  $\epsilon$  est proche du seuil, les temps mis en jeu deviennent trop grands pour que les effets du bruit numérique puissent être négligés.

Nous avons refait ces simulations en prenant  $a = 0$ , i.e., en imposant une durée de vie identique pour chaque lien, quelle que soit la tension. La différence de contraintes normales décroît alors exponentiellement et le système reste homogène, quelle que soit l'élongation imposée (Fig. 7.7).

Les systèmes uni- et bi-dimensionnels se comportent de façon analogue en ce qui concerne les fractures. Dans chacune de ces situations, le temps  $t_0$  qui apparaît Eq. (7.2) n'a pas d'influence sur la valeur du seuil de contrainte ou de déformation, et le temps d'attente lui est - naturellement - proportionnel.  $t_0$  est directement lié à la barrière énergétique  $\Delta G$  (Eq. (7.1)). Cette dernière dépend essentiellement du solvant, de la taille et de la nature de la partie collante (hydrophobe dans le cas des microémulsions connectées sus-citées). La barrière est d'autant plus basse que la taille des parties collantes est petite. Ainsi, si cette taille  $a$  tend vers 0, alors  $t_0$  tend aussi vers 0. Or, un fluide viscoélastique dont le temps de relaxation est infiniment petit est un fluide visqueux [16]. Par ailleurs, nous avons montré que l'instabilité responsable de l'apparition de la fracture disparaît lorsque  $a$  tend vers zéro. Nous retrouvons donc bien, avec ce modèle, l'absence de fractures pour les fluides purement visqueux.

Notons que la limite  $a \rightarrow 0$  n'implique pas nécessairement  $t_0 \rightarrow 0$  : il est en effet possible de changer la nature chimique des parties collantes, par exemple en remplaçant des atomes d'hydrogène par des atomes de fluor, pour les rendre de plus en plus hydrophobes et obtenir ainsi une valeur de  $\Delta G$  identique pour des parties collantes plus courtes.

## 7.4 Discussion

L'image classique de la fracture d'un matériau amorphe, se traduisant par la rupture irréversible de liaisons soumises à une force trop grande, ne s'applique pas aux réseaux transitoires. Dans un réseau transitoire, les liens ne sont pas permanents : ils se rompent quelle que soit leur tension, puis se refont. Pour

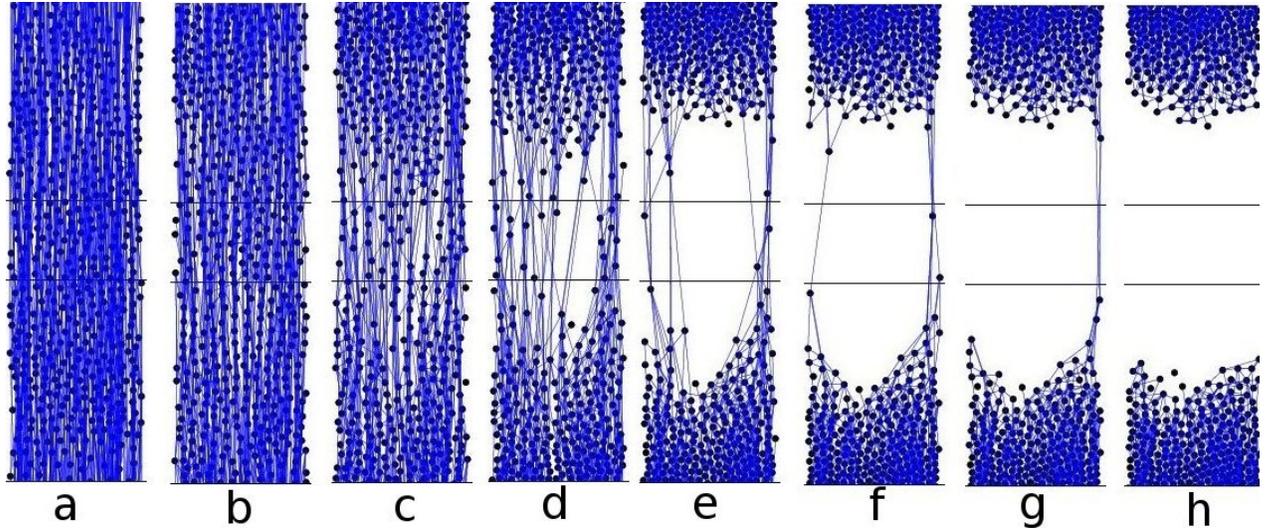


FIGURE 7.8 – Représentation du système répondant à un saut de déformation. (a) une elongation  $\epsilon = 5$  est appliquée au système initialement au repos. (b-g) les liens se déconnectent et se recombinent progressivement, en suivant la loi (7.2). (c) Des inhomogénéités apparaissent, et sont amplifiées (c-d). Il ne reste alors plus que quelques liens très tendus (e-g). Ces liens cassent rapidement, conduisant à la rupture du système en deux morceaux (h).

cette raison, ces matériaux sont auto-réparants. La stabilité du matériau se fait par l'équilibre entre rupture de liens et reconnections. Si la contrainte - ou la déformation - imposée au matériau est trop forte, le modèle cinétique introduit dans ce chapitre conduit à une rupture de cet équilibre, qui cède la place à l'apparition d'hétérogénéités spatiales s'amplifiant au cours du temps pour donner lieu à des fractures. Ce scénario peut s'appliquer à la plupart des matériaux auto-adhésifs : le matériau casse lorsque la cinétique de rupture des liens devient plus rapide que le mécanisme de cicatrisation.

Une prédiction importante de ce modèle cinétique est l'existence d'un temps de rupture, temps pouvant devenir significativement plus grand que le temps « microscopique » ( $t_0$ ) associé à la dynamique du réseau lorsque la contrainte (ou la déformation) est proche du seuil. L'existence d'un temps d'attente a été expérimentalement mise en évidence pour des matériaux amorphes, pas nécessairement auto-adhésifs [17, 18, 19]. Il a été interprété comme le temps moyen qu'il faut pour qu'une fluctuation d'énergie du système soit supérieure à la barrière d'énergie de Griffith [20]. Ce temps suivant une loi d'Arrhénius, Yves Pomeau a prédit un temps d'attente  $t_w$  de la forme [21, 2] :

$$t_w = t_0 \exp\left(-\frac{\tau_0^4}{\tau^4}\right), \quad (7.20)$$

où  $\tau$  est la contrainte appliquée,  $t_0$  est un temps microscopique et  $\tau_0$  une contrainte (qui dépend du module de cisaillement, de la tension de surface, de la géométrie). Cette loi est tracée à la figure 7.9, où l'on a choisi un système d'unités où  $\tau_0 = 1$  et  $t_0 = 1$ . Ce temps d'attente est défini quelle que soit la valeur de la contrainte  $\tau$  (absence de seuil). Il varie très rapidement au voisinage de  $\tau_0$  : si  $\tau > \tau_0$ , il est de l'ordre de grandeur de  $t_0$ , de telle sorte que le matériau rompt quasi instantanément après application de la contrainte. Si  $\tau < \tau_0$ , le temps d'attente est beaucoup plus long que  $t_0$ .

Ce scénario de la fracture thermiquement activée est basé sur un mécanisme très différent de celui du modèle cinétique. Ces deux scénarii conduisent à des comportements différents : (i) la contrainte caractéristique  $\tau_0$  du modèle de la fracture thermiquement activée est indépendante de la nature des interactions moléculaires contrairement au modèle cinétique, (ii) les variations du temps d'attente en fonction de la contrainte ne sont pas les mêmes (Fig. 7.9).

Il a été signalé à la section 6.1 que la contrainte pour laquelle les fractures apparaissent dans des microémulsions connectées utilisées est indépendante de la nature de l'extrémité hydrophobe des polymères associatifs. Ceci constitue un argument fort en faveur du modèle de la fracture thermiquement activée. Ces deux modèles peuvent en fait très bien être pertinents chacun dans un domaine bien déterminé de la contrainte et de la longueur  $a$  dont dépend la réduction de la durée de vie des liens. D'après la figure 7.9, le temps d'attente issu du modèle de la fracture thermiquement activée devient plus long que celui du modèle cinétique pour des grandes valeurs de la contrainte. Le mécanisme basé sur les arguments cinétiques, plus rapide, devrait alors être dominant : la tension des liens étant d'autant plus forte que la contrainte augmente, l'effet non linéaire de dépendance du temps de vie avec la tension se manifeste d'autant plus que la contrainte est élevée. Dans les expériences de la section 6.1, la contrainte de rupture du système expérimental est suffisamment faible pour que le modèle de la fracture thermiquement activée s'applique et pilote la valeur de la contrainte critique.

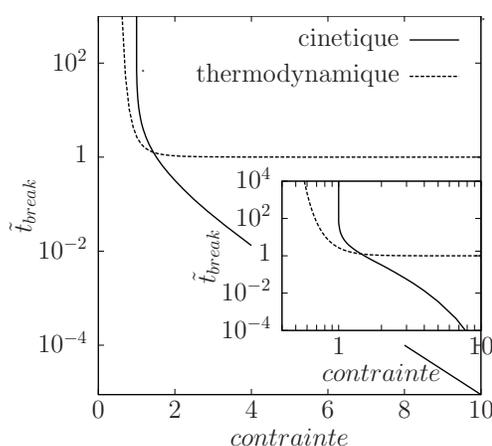


FIGURE 7.9 – Temps d'attente en fonction de la contrainte, calculé d'après le modèle de la fracture thermiquement activée (Eq. (7.20), en pointillés) et d'après le modèle cinétique (ligne continue). Nous avons tracé ces courbes en prenant la même valeur du temps caractéristique ( $t_0 = 1$ ), et la même valeur de la contrainte caractéristique ( $\tau_0 = 1$  et  $\tau_{break} = 1$ ) pour faciliter la comparaison. Notons la différence de comportement pour les faibles valeurs de la contrainte : divergence en  $\tau = 0$  dans un cas, en  $\tau = 1$  dans l'autre.

## 7.5 Conclusions et perspectives

Nous avons introduit un modèle cinétique pour modéliser simplement le comportement mécanique de réseaux transitoires soumis à de grandes contraintes ou de grandes déformations. Ce modèle prédit l'apparition d'une fracture pour des déformations - ou des contraintes - supérieures à un seuil. La valeur du seuil s'exprime en fonction de paramètres structuraux du système. La diminution de la durée de vie d'un lien lorsqu'il est sous tension est responsable de la rupture. Cette rupture intervient un certain intervalle de temps (pouvant être macroscopique) après application de la déformation - ou de la contrainte.

Le modèle de la fracture thermiquement activée constitue un autre scénario. Afin de connaître le domaine d'application de chacun des modèles, nous projetons de mesurer le temps d'attente en fonction de la contrainte pour des microémulsions connectées de différentes compositions, avec des polymères ayant des parties hydrophobes plus ou moins longues (expériences de rhéologie). S'il est possible de dégager les domaines d'application de chacun des deux modèles, un régime intermédiaire, mêlant les deux, devrait aussi apparaître.

Les simulations de la section 7.3 ont permis d'appuyer les idées issues du modèle cinétique unidimensionnel. Il serait intéressant d'obtenir des informations plus quantitatives et de caractériser la structure et la dynamique des hétérogénéités qui apparaissent et précèdent la fracture. Pour cela, il sera nécessaire d'avoir recours à des techniques de modélisation plus avancées de dynamique moléculaire. De plus, ces hétérogénéités devraient être observables en étudiant la lumière diffusée aux instants précédents la fracture. Une confrontation entre expériences et simulations est donc envisageable.

Par ailleurs, la pertinence de ces idées devrait être testée sur d'autres réseaux transitoires que les systèmes téléchéliques, par exemple avec des solutions semi-diluées de micelles géantes.

## Bibliographie

- [1] S. Mora. The kinetic approach to fracture in transient networks. *Soft Matter*, 7 :4908–4917, 2011.
- [2] Y. Pomeau. Fundamental problems in brittle fracture : unstable cracks and delayed breaking. *C. R. Mecanique*, 330 :249–257, 2002.
- [3] B.D Coleman. Statistics and time dependence of mechanical breakdown in fibers. *Journal of Applied Physics*, 29 :968–983, 1958.
- [4] Y. Moreno, J.B. Gomez, and A.F. Pacheco. Self-organized criticality in a fibre-bundle-type model. *Physica A*, 274 :400–409, 1999.
- [5] M.S. Green and A.V. Tobolsky. A new approach to the theory of relaxing polymeric media. *J. Chem. Phys.*, 14 :80, 1946.
- [6] H Eyring. Viscosity, plasticity, and diffusion as examples of absolute reaction rates. *Journal of Chemical Physics*, 4(4) :283–291, 1936.
- [7] H.H. Kausch. *Polymer Fracture*. Springer-Verlag, Berlin, 1978.
- [8] F. Tanaka and S.F. Edwards. Viscoelastic properties of physically cross-linked networks - transient network theory. *Macromolecules*, 25 :1516–1523, 1992.
- [9] F. Tanaka and S.F. Edwards. Viscoelastic properties of physically cross-linked networks part 1. nonlinear stationary viscoelasticity. *Non-Newtonian Fluid Mech.*, 43 :247–271, 1992.
- [10] F. Tanaka and S.F. Edwards. Viscoelastic properties of physically cross-linked networks part 2. dynamic mechanical moduli. *Non-Newtonian Fluid Mech.*, 43 :273–288, 1992.
- [11] F. Tanaka and S.F. Edwards. Viscoelastic properties of physically cross-linked networks part 3. time dependent phenomena. *Non-Newtonian Fluid Mech.*, 43 :289–309, 1992.
- [12] M. Filali, R. Aznar, M. Svensson, G. Porte, and J. Appell. Swollen micelles plus hydrophobically modified hydrosoluble polymers in aqueous solutions : Decoration versus bridging. a small angle neutron scattering study. *J. Phys. Chem.*, 34 :7293, 1999.
- [13] R.G. Larson. *The structure and the rheology of complex fluids*. Oxford University Press, New-York, 1999.
- [14] R.W. Ogden. *Non-linear elastic deformations*. Ellis Horwood Limited, Chichester, 1987.
- [15] P.I. Hurtado, L. Berthier, and W. Kob. Heterogeneous diffusion in a reversible gel. *Physical Review Letters*, 98 :135503, 2007.

- [16] C.W. Macosko. *Rheology : principles , measurements and applications*. Wiley-VCH, New York, 1994.
- [17] L. Pauchard and J. Meunier. Instantaneous and time-lag breaking of a 2-dimensional solid rod under a bending stress. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :3565–3568, 1993.
- [18] D. Bonn, H. Kellay, M. Prochnow, K. Ben-Djemaa, and J. Meunier. Delayed fracture of an inhomogeneous soft solid. *Science*, 280 :265–267, 1998.
- [19] A. Guarino, S. Ciliberto, and A. Garcimartin. Failure time and microcrack nucleation. *Europhysics Letters*, 47 :456–461, 1999.
- [20] A.A Griffith. The phenomena of rupture and flow in solids. *Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A*, 221 :163–198, 1920.
- [21] Y. Pomeau. Brisure spontanée de cristaux bidimensionnels courbés. *C. R. Acad. Sci. Ser.*, 314 :553, 1992.



## Chapitre 8

# Conclusions et perspectives générales

Nous venons d'explorer un domaine de la mécanique du solide jusque là ignoré : celui où la longueur élasto-capillaire, définie comme étant le rapport entre la tension de surface et le module de cisaillement, n'est pas négligeable devant toutes les autres échelles de longueurs.

- Des effets capillaires apparaissent, produisant des phénomènes parfois proches de ceux observés sur les liquides : instabilité de Rayleigh-Plateau, formes plus ramassées, coins plus arrondis, suppression de petites longueurs d'onde.
- Des phénomènes ne pouvant être appréhendés par la mécanique des milieux continus le deviennent, comme les déformations d'amplitude finie à la tête d'une fracture.

L'apport des fluides élastiques a été essentiel dans la mesure où ils permettent d'établir un lien tangible entre fluide et solide élastique. Si ces deux types de matériaux se comportent de façon bel et bien différentes, des similitudes existent. Je vais continuer à les traquer et à les étudier dans le but :

- d'apporter une compréhension physique de phénomènes relevant *a priori* du champ de la mécanique,
- de découvrir des phénomènes nouveaux.

Mes projets de recherches s'articulent autour de deux axes aux intersections non nulles :

- déformations de matériaux très mous,
- fracture en matière molle,

chacun de ces deux axes s'accompagnant du développement de (nouveaux) matériaux (fluides viscoélastiques, élastomères, gels). Les perspectives présentées à la fin de chaque chapitre constituent évidemment une partie des mes projets futurs. Je ne les reprends pas ici, pour laisser place à une description des projets moins avancés.

### 8.1 Projets portant sur les solides mous

Je vais continuer dans la voie de l'interaction entre capillarité et élasticité et mettre en évidence de nouveaux effets. Je compte en particulier étudier l'effet d'une troisième phase, solide et dure, sur la géométrie des solides mous. L'analogie de cette situation pour les liquides sont les phénomènes de mouillage. Des travaux théoriques récents [1] ont porté sur cette problématique. Les deux voies expérimentales possibles pour étudier ces effets sont (i) étudier des objets de taille nanométrique afin qu'elle soit comparable à la longueur élasto-capillaire, (ii) utiliser des objets plus grands mais constitués de matériaux de très faibles modules de cisaillement, comme les gels.

La matière vivante est en partie constituée de matériaux mous. Elle peut donc être sujette à des instabilités mécaniques (élastiques et/ou liquides). Je vais étudier, sur des cas concrets, le rapport pouvant exister entre ces instabilités et la morphogénèse. La genèse des bronches pulmonaires dans l'embryon est un premier exemple : les bronches sont de plus en plus ramifiées au cours du développement embryonnaire (Fig. 8.1).

Mon objectif est de déterminer si l'origine de ces ramifications est génétique, physique (par le biais d'une instabilité), ou mixte. Je débute dans cette perspective une collaboration avec le docteur Pierre Blanc (CHU Clermont-Ferrand).

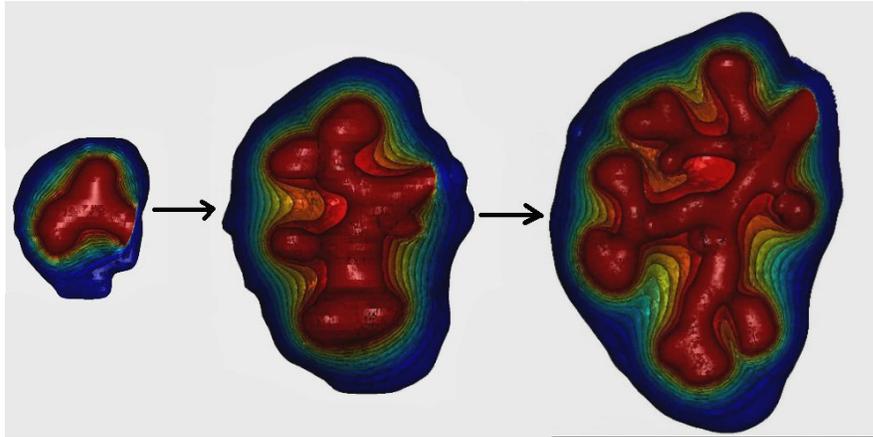


FIGURE 8.1 – Coupe de lobes pulmonaires d'embryons de souris à différents stades de la croissance (coupes réalisées par P. Blanc). De nouvelles ramifications de la bronche (visible en rouge) se forment lors du développement de l'organe.

## 8.2 Projets portant sur les fractures de matériaux mous

### 8.2.1 Ductilité et fragilité de fluides complexes

Fractures fragiles et fractures ductiles ont été étudiées en détail : de récents travaux portant sur des matériaux désordonnés de structures très différentes comme les os, des assemblages de nanotubes de carbone, des gels chimiques [2], et des mousses [3] visent à caractériser les mécanismes microscopiques mis en jeu dans les transitions ductile/fragile. Dans ce contexte, les réseaux transitoires occupent une place particulière dans la mesure où ils sont auto-cicatrisants et peuvent s'écouler. Des caractéristiques d'une transition ductile/fragile sont apparues lors de simulations récentes de réseaux transitoires [4]. Des expériences ont aussi apporté de premiers indices sur une telle transition : un réseau transitoire dont la morphologie peut être changée continûment en modifiant les proportions des constituants chimiques (système décrit rapidement à la section 6.4) est cisailé avec un taux constant : une fracture semble s'accompagner d'un changement de structure dans certains cas (ce qui correspondrait à un comportement ductile), alors que la structure ne semble pas changer pour d'autres compositions de ces fluides [5, 6].

En sus de l'étude de l'effet de la structure d'équilibre des réseaux transitoires sur les propriétés ductiles/fragiles, je vais étudier l'effet d'un écoulement sur cette transition : le paramètre pilotant la transition n'est alors plus la composition du système, mais le taux de déformation.

Les réseaux de micelles géantes sont rhéofluidifiants [7] (Fig. 1.5). Cela traduit un changement de structure sous cisaillement permanent. Ce changement ne s'opère pas dans les microémulsions connectées qui ne sont pas rhéofluidifiantes (Fig. 1.8). Je m'attends à ce que les caractéristiques des fractures (ductiles ou fragiles) changent sous cisaillement dans le cas des solutions de micelles géantes, et ne changent pas dans le cas des microémulsions connectées. Les microémulsions connectées semblent être fragiles quel que soit le taux de cisaillement. Des expériences préliminaires indiquent que les solutions de micelles géantes sont fragiles au repos. Par exemple, les fractures observées lors d'expériences de rhéologie, pour un saut de déformation, sont semblables aux fractures de microémulsions connectées dans ces mêmes conditions. Ce matériau semble par contre ductile sous cisaillement : les fractures observées lors d'expériences de gouttes pendantes de

solutions de micelles géantes sont moins nettes que celles observées avec des microémulsions connectées (Fig. 6.10). Les propriétés ductiles/fragiles seraient donc pilotées par l'écoulement. Je souhaite approfondir et mettre en forme cette notion en étudiant la fracture de fluides viscoélastiques sous écoulement (dans des cellules de Hele-Shaw, dans un rhéomètre pour superposer un saut de déformation à un écoulement, ou par des expériences de gouttes pendantes) pour différentes valeurs du taux de cisaillement et différentes structures d'équilibre. L'interaction ductilité/écoulement devrait permettre de faire ressortir la notion de *rhéo-ductilité* et de *rhéo-fragilité* : un fluide *rhéo-ductile* devenant ductile (ou de plus en plus ductile) lorsque le taux de cisaillement augmente, l'inverse se produisant pour un fluide *rhéo-fragile*.

### 8.2.2 Rôle des hétérogénéités dynamiques et structurales

Les hétérogénéités dynamiques sont associées à des échelles de longueur de plus en plus grandes à l'approche de la transition vitreuse [8], que ce soit dans les systèmes moléculaires ou dans des systèmes colloïdaux [9, 10, 11]. Un problème ouvert est de déterminer de quelle manière ces hétérogénéités influent sur les propriétés mécaniques des matériaux. La nucléation et la propagation de fractures mettent en jeu de petites échelles de longueur, échelles pouvant être du même ordre de grandeur que celles associées aux hétérogénéités dynamiques. Étudier l'impact des hétérogénéités dynamiques sur la nucléation et la propagation de fractures devrait permettre de sonder l'effet de ces hétérogénéités sur les propriétés du matériau. En particulier, ces hétérogénéités sont-elles liées à une éventuelle ductilité [12] ? Je vais traiter ce problème, en collaboration avec Luca Cipelletti, en étudiant les fractures dans des suspensions colloïdales de sphères dures [13]. Lorsque les interactions entre sphères dures sont uniquement des contraintes de volumes exclus, une augmentation de la concentration conduit à un état vitreux. Cet état peut aussi être atteint en introduisant des interactions attractives [14], comme des forces de déplétion [15]. Une grande variété de systèmes vitreux, ayant tous une dynamique semblable, peut être obtenue en jouant sur la concentration et la nature des interactions (de répulsives à attractives). Nous voulons étudier les fractures de ces systèmes, pour faire ressortir une transition ductile/fragile pilotée par ces interactions. Ces fractures seront produites dans des cellules de Hele-Shaw radiales, en injectant un liquide non miscible par le centre à pression ou débit contrôlé. Cette géométrie rend possible des mesures en temps réel de la structure et de la dynamique du système, avant et pendant le développement de la fracture. Nous espérons ainsi pouvoir corréler les propriétés mécaniques macroscopiques (ductilité/fragilité) aux propriétés structurelles et dynamiques à l'échelle locale. Nous allons développer des cellules de Hele-Shaw miniatures afin de réduire la quantité d'échantillon et de pouvoir les placer dans des dispositifs permettant des mesures locales :

- mesures par microscopie confocale afin de déterminer les déplacements individuels de particules et obtenir des informations détaillées sur leur dynamique [10] avant que la fracture ne commence à se propager. Les déplacements durant la fracture seront probablement trop rapides pour être suivis par cette technique. Cependant, la zone où la fracture nucléée pourra être repérée. Nous pourrions ainsi mettre en évidence d'éventuels rapports entre structure, dynamique et nucléation : les fractures vont-elles apparaître aux endroits où la fraction volumique est légèrement plus basse ? Aux endroits où la dynamique spontanée est la plus rapide ?
- mesures par des méthodes de diffusion dynamique de la lumière, en utilisant la technique de corrélation de speckles développée ces dernières années par Luca Cipelletti [16, 11]. Nous obtiendrons des informations résolues à la fois spatialement et dans le temps. La résolution temporelle, limitée par la fréquence d'acquisition de la caméra utilisée, peut atteindre 3000 Hz (au lieu de quelques Hertz en microscopie confocale). La largeur du champ sondé est d'environ 1 mm × 1 mm.

Ces deux méthodes sont complémentaires : informations à l'échelle du colloïde avec une faible résolution temporelle par microscopie confocale, informations sur un champ plus large et résolu en temps avec les techniques de diffusion de la lumière.

Cette étude s'inscrit dans le cadre du projet F2F<sup>1</sup>. Des expériences analogues, portant sur d'autres systèmes vitreux (polymères, verres moléculaires), utilisant d'autres techniques d'investigation et réalisées par nos partenaires, Elisabeth Bouchaud et Olivier Dauchot (CEA-Saclay ; ESPCI-UMR Gulliver), permettront, après comparaison, de conclure sur la généralité de nos résultats. Par ailleurs, les résultats issus des expériences sur les fluides complexes, présentant eux aussi des temps de relaxation (section 6.4), serviront de référence.

### 8.2.3 Prédire les catastrophes

Comment prévoir l'imminence d'une catastrophe, comme un tremblement de terre ou une fracture ? Le Berre et al. ont récemment proposé un modèle [17] selon lequel les fonctions de corrélations des fluctuations changent à l'approche de cette catastrophe. Ceci ouvre une voie pour prédire (et donc anticiper) la venue d'un événement catastrophique.

Dans la section précédente (section 8.2.1), nous comptons déterminer des relations existant entre fluctuations locales et zone de nucléation. Nous devrions alors être capables de répondre à la question : « lorsqu'une fracture apparaît, où va-t-elle se former ? » Nous nous intéressons ici à un problème **différent** : « comment savoir si une fracture va se former quelque part dans un échantillon ? » Deux cas de figure peuvent se présenter :

- le système se trouve dans un état de contrainte inconnue, contrainte qui augmente lentement dans le temps jusqu'à dépasser une contrainte seuil inconnue,
- le système est soumis à une contrainte stationnaire, suffisante pour qu'après un certain temps d'attente, une fracture apparaisse.

Les systèmes de la matière molle sont particulièrement bien adaptés pour cette étude, dans la mesure où les fluctuations sont suffisamment grandes pour être mesurables.

Une première situation que je souhaite étudier est l'effondrement d'un gel colloïdal attractif (forces de déplétion) sous l'effet de son propre poids. La sédimentation se fait par à-coups. L'analyse de la diffusion multispeckle de la lumière permet de calculer à chaque instant les fonctions de corrélations temporelles des fluctuations [11]. Mon objectif est de trouver d'éventuelles signatures annonciatrices d'à-coups dans la sédimentation, ou annonciatrice d'une réorganisation microscopique de la structure du gel. La contrainte extérieure (= la gravité) est constante sur la durée de l'expérience.

La diffusion multispeckel de la lumière devrait aussi permettre d'étudier le spectre temporel des fluctuations dans le volume d'un élastomère mis sous contrainte, par exemple sous étirement constant ou croissant, pour qu'il casse à un moment donné.

L'utilisation de rhéomètres à déformation (resp. à contrainte) imposée permet d'une part de contrôler la déformation (resp. la contrainte), et d'autre part de mesurer les fluctuations de la contrainte (resp. de la déformation), puis d'en calculer les fonctions de corrélations (en prenant le signal brut, directement en sortie de capteur). Nous pourrions ainsi étudier l'effet de la proximité d'une fracture sur ces fluctuations, que ce soit dans une situation stationnaire sous-critique, où lors d'une rampe de déformation ou de contrainte. Enfin, un couplage entre rhéologie et diffusion de rayonnement (de lumière ou de rayon x) devrait aussi donner accès aux fluctuations tout en pilotant la contrainte ou la déformation pour atteindre une situation catastrophique.

---

1. From Fingering to Fracture

## Bibliographie

- [1] J.M. Carrillo, E. Raphael, and A. Dobrynin. Adhesion of nanoparticles. *Langmuir*, 26 :12973–12979, 2010.
- [2] H. Itagaki, T. Kurokawa, H. Furukawa, T. Nakajima, Y. Katsumoto, and J.P. Cong. Water-induced brittle-ductile transition of double network hydrogels. *Macromolecules*, 43 :9495, 2010.
- [3] S. Arif, J.C. Tsai, and S. Hilgenfeldt. Speed of crack propagation in dry aqueous foams. *European Journal of Physics*, 92 :38001, 2010.
- [4] J. Sprakel, E. Spruijt, J. van der Gucht, J.T. Padding, and W.J. Briels. Failure-mode transition in transient polymer networks with particle-based simulations. *Soft Matter*, 5 :4748, 2009.
- [5] T. Tixier, H. Tabuteau, A. Carrière, and C. Ramos, L. ANS Ligoure. Transition from brittle to ductile rheological behavior by tuning the morphology of self-assembled networks. *Soft Matter*, 6 :2699, 2010.
- [6] L. Ramos, A. Laperrousaz, P. Dieudonné, and C. Ligoure. Structural signature of a brittle-to-ductile transition in self-assembled networks. *Phys. Rev. Lett.*, page in press, 2011.
- [7] J.F. Berret, D.C. Roux, and G. Porte. Isotropic-to-nematic transition in wormlike micelles under shear. *J. Phys. II France*, 4 :1261–1279, 1994.
- [8] E. Donth, H. Huth, and M. Beiner. Crossover region of dynamic glass transition : general trends and individual aspects. *Journal of Physics-Condensed Matter*, 13 :L451, 2001.
- [9] W. Kegel and A. van Blaaderen. Direct observation of dynamical heterogeneities in colloidal hard-sphere suspensions. *Science*, 287 :290, 2001.
- [10] E. Weeks, J. Croker, A. Levitt, A. Schofield, and D. Weitz. Three-dimensional direct imaging of structural relaxation near the colloidal glass transition. *Science*, 287 :627, 2000.
- [11] A. Duri, D.A. Sessoms, V. Trappe, and L. Cipelletti. Resolving long-range spatial correlations in jammed colloidal systems using photon correlation imaging. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :085702, 2009.
- [12] J.M. Lopez-Cepero, S.A. Wiederhorn, T. Fett, and J.P. Guin. Do plastic zones form at crack tips in silicate glasses ? *International Journal of Materials Research*, 98 :1170, 2007.
- [13] P. Pusey and W. Vanmegen. Phase behaviour of concentrated suspensions of nearly hard colloidal spheres. *Nature*, 320 :6060, 1986.
- [14] V. Trappe, V. Prasad, L. Cipelletti, P. Segre, and D. Weitz. Jamming phase diagram for attractive particles. *Nature*, 411 :6839, 2001.
- [15] W. Poon. Effects of phase behavior on the drying of colloidal suspensions. *Journal of physics-condensed matter*, 14 :R859, 2002.
- [16] A. Duri, H. Bissig, V. Trappe, and L. Cipelletti. Time resolved correlation measurements of temporally heterogeneous dynamics. *Phys. Rev. E*, 72 :051401, 2005.
- [17] Y. Pomeau, M. Le Berre, J.L. Le Mouel, C. Narteanu, and P. Fromy. Prédire les catastrophes ? *à paraître*, 2011.



# Annexe A

## CV

### Serge MORA

né le 4 janvier 1974 (Fréjus)

smora@univ-montp2.fr

04 67 14 35 88

Maître de conférences (classe normale) à l'Université de Montpellier 2.

28<sup>eme</sup> section CNU.

### Formation

**1995** Admission à l'École Normale Supérieure de Lyon, concours option physique et chimie.

**1995-1999** Scolarité à l'ENS de Lyon. Obtention du Magistère des sciences de la matière de Lyon.

DEA de *physique statistique et phénomènes non-linéaires* (1999).

Obtention de l'agrégation de sciences physiques option physique (1998).

### Enseignement

**2000-2003 Moniteur** à l'Université Paris XI.

**2003-2004 ATER** à l'Université Paris XI.

**2004-** **Maître de conférences** à l'Université de Montpellier 2.

2004-2008 enseignement à l'IUT de Montpellier, au département chimie de Sète.

2008- enseignement à l'IUT de Montpellier, département de Génie Biologique.

2010- enseignement pour les masters "Matière Molle et Systèmes Vitreux" et "Physique et Ingénierie du Vivant" (M2, Faculté des Sciences de Montpellier).

## Recherche

**1999-2000** Stage **militaire** au SPEC-CEA (Saclay, 10 mois) : *Fluctuations d'une membrane de phospholipides*. Directeur de stage : J. Daillant.

**2000-2003** **Thèse** au SPEC et au LURE : *Structure d'interfaces de fluides complexes*. Directeur : J. Daillant. Thèse soutenue le 26 septembre 2003 au sein de l'Université Paris XI.

**2003-2004** **ATER** au FAST (Orsay) *Sédimentation en milieux rhéofluidifiants*. Avec C. Allain.

**2004-** **Maître de conférences** au Laboratoire Charles Coulomb, équipe **Matière Molle** (Montpellier)

Mots clés : matière molle, instabilités aux surfaces libres, fracture, élasticité, viscoélasticité, rhéologie, formulation (physico-chimie), expériences, théorie.

## Animation scientifique

**2009-** Responsable scientifique de la plateforme de Rhéologie commune au Laboratoire Charles Coulomb et à l'Institut d'électronique du Sud.

**2010-** Responsable de l'axe transverse inter-département "Interfaces de matériaux mous" du Laboratoire Charles Coulomb.

**2010- 2013** Porteur du projet ANR-blanc : From fingering to fracture (F2F).

# Annexe B

## Encadrement

- **Co-encadrement de thèses :**

- Nicolas Puech (2005-2008), directeur : J. Oberdisse. *Structure et propriétés rhéologiques de réseaux transitoires chargés par des nanoparticules de silice.*
- Guillaume Foyard (2010-), directeur : C. Ligoure. *Sur la fragilité et la ductilité de fluides complexes.*

- **Collaborations dans le cadre de thèses :**

- Chantal Rufier (2004-2008), directeur : Michel Viguier. *Polymères associatifs téléchéliques asymétriques : Synthèse, Structure et Rhéologie.*
- Livie Lienafa (2005-2009), directeur : Jean Jacques Robin. *Synthèse et étude de copolymères triblocs à base de Poly-(Éthylène Téréphtalate).*

- **Encadrement de stage de Master :**

- Sanja Vladoredjiv (Maîtrise), Avril-Juin 2005. *Rupture de filaments viscoélastiques.*
- Nicolas Puech (DEA), Mars-Juillet 2005. *Fracture de fluides complexes.*
- Brieuc Guillerm (M1), Mars-Juin 2006. *Effet de la taille des liens sur les propriétés rhéologiques d'un réseau transitoire modèle.*
- Raphaël Rolland (M1) Mai-Juillet 2008. *Instabilités dans les fluides viscoélastiques.*
- Etienne Loiseau (M2), Mars-Juillet 2008. *Instabilité de Saffman-Taylor pour les fluides viscoélastiques.*
- Andie Kermarec (M2), Mars-Juillet 2008. *Comprendre les propriétés rhéologiques de réseaux transitoires à partir de la physique statistique.*
- Abdelsem Ziaissa (M1), Mai-Juin 2009. *Gels transitoires à population de liens bidisperse.*
- Renata Garces (M1), Septembre 2009-Janvier 2010. *Distributions des temps d'attentes pour des fractures thermiquement activées.*
- Mathieu Kint (M1), Avril-Juillet 2010. *Intstabilité à la surface de solides élastiques déformés.*



## Annexe C

# Publications

(27) S. Mora, M. Abkarian, H. Tabuteau, Y. Pomeau. *Surface Instability of Soft Solids under strain* *Soft Matter* 7, DOI : 10.1039/c1sm06051a (2011).

(26) C. Rufier, A. Collet, M. Viguier, J. Oberdisse, S. Mora. *Influence of Surfactants on Hydrophobically End-Capped Poly(ethylene oxide) Self-assembled Aggregates Studied by SANS* *Macromolecules* 44, In press (2011).

(25) H. Tabuteau, S. Mora, M. Ciccotti, C. Hui, C. Ligoure. *Propagation of a brittle fracture in a viscoelastic fluid.* *Soft Matter* 7, pp. 9474-9483 (2011).

(24) L. Lienafa, J. Oberdisse, S. Mora, S. Monge, J.J. Robin. *Rheology and SANS on PET-b-PLAc-b-P(DMAEMAq) Triblock Copolymers : Impact of the PET and Polyelectrolyte Chain Length.* *Macromolecules* 44, pp. 5326-5335 (2011).

(23) S. Mora. *The Kinetic Approach to Fracture in Transient Networks.* *Soft Matter* 7, pp. 4908-4917 (2011).

(22) S. Mora, T. Phou, J.M. Fromental, L.M. Pismen and Y. Pomeau. *Capillarity Driven Instability of a Soft Solid.* *Phys. Rev. Lett.* 214301 (2010).

(21) N. Puech, S. Mora, T. Phou, G. Porte, J. Jestin and J. Oberdisse. *Microemulsion nanocomposites : phase diagram, rheology and structure using a combined small angle neutron scattering and reverse Monte Carlo approach.* *Soft Matter*, 6, 5605-5614 (2010).

(20) S. Mora, M. Manna. *Saffman-Taylor instability of viscoelastic fluids : from viscous fingering to elastic fractures.* *Phys. Rev. E*, 81, 026305 (2010).

(19) J. Daillant, J. Pignat, S. Cantin, F. Perrot, S. Mora, O. Konovalov. *Elasticity of two-dimensional crystalline monolayers of fatty acid salts at an air-water surface.* *Soft Mat.*, 5, 203-207 (2009).

(18) S. Mora, M. Manna. *Saffman-Taylor instability for generalized newtonian fluids* *Phys. Rev. E*, 80, 106308 (2009).

(17) N. Puech, S. Mora, G. Porte, I. Grillo, T. Phou, J. Oberdisse. *Silica Nanoparticles dispersed in a self-assembled viscoelastic matrix : structure rheology and comparison to reinforced elastomers.* *J. Braz Physics*, 39 (1A), 198-204 (2009).

- (16) C. Rufier, A. Collet, M. Viguier, J. Oberdisse, S. Mora. *SDS Interactions with Hydrophobically End-Capped Poly(ethylene oxide) Studied by  $^{13}\text{C}$  NMR and SANS*. *Macromolecules*, 42 (14), 5226-5235 (2009).
- (15) H. Tabuteau, S. Mora, M. Abkarian, C. Ligoure. *Microscopic mechanisms of the brittleness of viscoelastic fluids*. *Phys. Rev. Lett.*, 102, 155501-155504 (2009).
- (14) N. Puech, S. Mora, V. Testard, G. Porte, C. Ligoure, I. Grillo, T. Phou, J. Oberdisse. *Structure and Rheological Properties of Model Microemulsion Networks Filled with Nanoparticles*. *Eur. Phys. J. E*, 26, 13-24 (2008).
- (13) C. Rufier, A. Collet, M. Viguier, J. Oberdisse, S. Mora. *Asymmetric end-capped poly(ethylene oxide). Synthesis and rheological behavior in aqueous solution*. *Macromolecules*, 41, 5854-5862 (2008).
- (12) H. Tabuteau, S. Mora, L. Ramos, G. Porte, C. Ligoure. *Ductility versus brittleness in self-assembled transient networks*. *Progress of theoretical physics (supplement)*, 175, 47-53, (2008).
- (11) V. Padmanabhan, J. Daillant, L. Belloni, S. Mora, M. Alba, O. Konovalov. *Specific Ion Adsorption and Short-Range Interactions at the Air Aqueous Solution Interface*. *Phys. Rev. Lett.*, 99, 086105 (2007).
- (10) J. Daillant, E. Bellet-Amalric, A. Braslau, T. Charitat, G. Fragneto, F. Graner, S. Mora, F. Rieutord and B. Stidder. *Structure and fluctuations of a single floating lipid bilayer*. *Proc. Nat. Acad. Sci.*, 2005, 102 (33) : 11639.
- (9) S. Mora, L. Talini and C. Allain. *Structuring Sedimentation in a Shear-Thinning Fluid*. *Physical Review Letters* 95, 088301 (2005).
- (8) S. Mora et J. Daillant. *Sur la compréhension microscopique des interfaces liquide-vapeur*. *Bulletin de la société française de physique* 143 (2004) pp 29-30.
- (7) S. Mora, J. Daillant, D. Luzet and B. Struth. *X-ray surface scattering investigation of Langmuir films : phase transition and elastic properties*. *Europhysics Letters* 66 (5) (2004) pp. 694-700.
- (6) S. Mora, J. Daillant, K. Mecke, D. Luzet, M. Alba, A. Braslau, and B. Struth. *An x-ray synchrotron study of liquid-vapor interfaces at short length-scales : effect of long-range forces and bending energies*. *Physical Review Letters* 90 (2003) 216101.
- (5) S. Mora and J. Daillant. *Height and density correlations at liquid surfaces ; application to x-ray scattering*. *Eur. Phys. J. B* 27 (2002) pp 417-428.
- (4) J. Daillant, S. Mora, C. Fradin, M. Alba, A. Braslau, D. Luzet. *Structure and fluctuations of liquid surfaces and interfaces*. *Applied Surface Science* 182 (2001) pp223-230.
- (3) M. Filali, E. Michel, S. Mora, F. Molino and G. Porte. *Stress relaxation in model transient networks : percolation and rearrangement of the crosslinks*. *Colloids and Surfaces A*, 183-185 (2001) pp203-212.
- (2) G. Porte, M. Filali, E. Michel, J. Appell, S. Mora, F. Molino. *Droplets of microemulsion and telechelic polymers : linear rheology and flow instability at high shear*. *Studies in Surface Science and Catalysis*, 132 (2000), 55.

(1) *F. Molino, J. Appell, M. Filali, E. Michel, G. Porte and S. Mora and E. Sunyer. A transient network of telechelic polymers and microspheres : structure and rheology. Journal of Physics : Condensed Matter, 12 (2000), A491.*

**Chapitre de livre :** *S. Mora , Daillant Jean, Sentenac Anne. Diffuse Scattering. X-ray and Neutron Reflectivity Principles and Applications (2009) p.133-182*