

CRITERE DE STABILITE POUR LES FLUIDES A PARAMETRE D'ORDRE COUPLE AVEC L'ECOULEMENT

V. Schmitt, F. Lequeux, *C. Marques

L.U.D.F.C. U.R.A. 851 CNRS

Institut Le Bel 4 rue Blaise Pascal, 67070 Strasbourg

* I.C.S. U.R.P. 022 CNRS

6 rue Boussingault, 67000 Strasbourg

Résumé :

Dans cette note, nous considérons l'effet des couplages entre le gradient de cisaillement et le paramètre d'ordre et entre le paramètre d'ordre et la contrainte, sur les instabilités mécaniques en cisaillement simple. Dans la limite d'une approche linéaire, nous montrons qu'un couplage avec un paramètre d'ordre non conservatif ne modifie pas le critère de stabilité qui dépend essentiellement de la croissance de la contrainte avec le taux de cisaillement. Par contre, lorsque le paramètre est conservatif, la stabilité est largement modifiée. On peut alors observer des écoulements instables dans un fluide apparemment newtonien. Nous donnons donc les critères et les mécanismes d'instabilités dans ce cas.

Abstract :

In this note, we consider the coupling effect between the shear rate and the order parameter, and between the order parameter and the stress, on the mechanical instabilities under a shear flow. We show that, at the level of the linear stability analysis, the coupling with a non conserved order parameter doesn't modify the stability criterion which depends essentially on the functional form of the stress with shear rate. For conserved order parameters this criterion is significantly modified. In this case, flow instabilities may even arise in apparently newtonian fluids. We present the stability criterion for such instabilities to occur.

I Introduction.

Les instabilités mécaniques dues à l'annulation de la dérivée de la contrainte par rapport au gradient (ce qui correspond à l'annulation de la viscosité locale apparente) sont connues depuis assez longtemps dans le domaine des polymères [1]. Dans l'extrusion de polymères fondus, par exemple, on observe des oscillations de pression dans certains régimes probablement dues à un changement de signe de la viscosité locale du fluide. Des transitions de phases induites par écoulement ont aussi été mises en évidence [2,3], dans des solutions de polymères ou de tensioactifs. Dans ces cas, le mécanisme affecte peu la géométrie de l'écoulement et ne donne lieu qu'à des fluctuations de concentration mais pas à des instabilités mécaniques. En fait, tous les auteurs ayant modélisé ces phénomènes ont négligé le couplage entre le gradient de cisaillement et la concentration [4]. Dans cette note, nous montrons que ce couplage peut être, dans certains cas, à l'origine de nouvelles instabilités. Nous effectuons une analyse linéaire des instabilités, en développant toutes les quantités autour de leur valeur dans un écoulement laminaire stable. Nous nous limitons au cas du cisaillement simple, avec des instabilités de vecteurs d'onde parallèles au gradient de vitesse. Tout d'abord, nous rappelons l'instabilité mécanique classique, puis nous étendons ce formalisme aux fluides à paramètre d'ordre. Selon que le paramètre d'ordre est conservatif (comme la concentration) ou non (comme l'anisotropie nématique), une nouvelle instabilité peut apparaître. Nous discutons les effets probables sur les mesures rhéologiques et les artefacts que ces instabilités peuvent introduire.

II Géométrie et instabilité mécanique classique.

Définissons dans un premier temps la géométrie du système. Nous avons un écoulement de cisaillement simple, stationnaire, tel que la vitesse est parallèle à l'axe des x , et le gradient à l'axe des y (voir figure 1a). Les trois composantes sur les axes x, y , et z sont données par :

$$v_x = g_0 y, \quad v_y = 0, \quad v_z = 0$$

Dans le cas où l'inertie est négligeable, il n'existe pas d'instabilité si le fluide est viscoélastique linéaire [5]. Par contre si la viscosité locale change de signe, comme cela arrive aux forts taux de cisaillement dans les polymères fondus [1], la contrainte peut décroître avec le taux de cisaillement. Ecrivons la contrainte de cisaillement sous la forme :

$$\sigma_{xy} = \sigma(g_0) + \partial_g \sigma_0 \delta g \quad (1)$$

en fonction d'un petit écart δg au gradient g_0 . Les dérivées seront toujours écrites sous leur forme abrégée afin d'alléger les expressions. Les équations de Navier Stokes s'écrivent alors, après dérivation selon y :

$$\rho \partial_t \delta g = \partial_g \sigma_0 \partial_{yy} \delta g \quad (2)$$

qui n'est rien d'autre qu'une équation de diffusion. Néanmoins il est clair que dès que la viscosité locale $\delta_g \sigma_0$ change de signe, le système est instable et il se développe une instabilité avec une fluctuation spatiale du gradient qui devient, après transformée de Fourier selon l'axe des y (la transformée de Fourier selon y sera toujours désignée par l'indice k au cours de cette note) :

$$g = g_0 + \int_{-\infty}^{+\infty} \delta g_k e^{\frac{-k^2 \delta_g \sigma_0}{\rho} t + iky} dk \quad (3)$$

Dans la pratique, l'instabilité se développe par une structuration en bandes normales au gradient de vitesse (figure 1b). Après développement de l'instabilité, chacune des bandes a un gradient de cisaillement différent, mais une contrainte similaire.

L'introduction de phénomènes viscoélastiques ne change pas beaucoup ce formalisme. Considérons une petite fluctuation temporelle du gradient de cisaillement. La variation de la contrainte qui en résulte est mesurable si il n'y a pas d'instabilité et vaut :

$$\sigma(g_0 + \delta g, t) = \sigma(g_0) + \int_{-\infty}^t \delta G(t-t') \delta g(t') dt' \quad (4)$$

définissant ainsi par analogie avec le module de relaxation classique, le module de relaxation à gradient non nul. La viscosité locale est simplement l'intégrale de la fonction δG :

$$\eta_{loc} = \delta_g \sigma_0 = \int_0^{+\infty} \delta G(t) dt \quad (5)$$

Dans ce cas, l'équation de Navier Stokes, après transformée de Laplace sur le temps (de variable conjuguée p) et de Fourier sur l'axe des y donne la loi de croissance de l'instabilité :

$$\mathcal{L}\delta g_k(p) = \frac{\rho \delta g_k(t=0)}{\rho p + k^2 \mathcal{L}\delta G(p)} \quad (6)$$

Le système n'est instable que si cette fonction a un pôle positif c'est à dire si le dénominateur peut s'annuler pour une valeur de p positive. Le choix de k étant arbitraire, le système est instable si il existe une valeur de k telle que la transformée de Laplace $\mathcal{L}\delta G(p)$ de δG peut s'annuler pour une valeur positive de p . Si la contrainte à l'équilibre décroît pour une augmentation du gradient alors $\mathcal{L}\delta G(p=0) < 0$ et donc le système est instable comme décrit précédemment. Par contre, cette écriture permet au système d'être instable même si $\mathcal{L}\delta G(p=0) > 0$ pourvu que la fonction $\mathcal{L}\delta G(p)$ soit négative pour une valeur de p positive. Ce cas assez particulier est peu probable. Il nécessite que la variation de contrainte, après augmentation en forme de Dirac du gradient, soit négative sur une gamme suffisante de temps courts, puis réaugmente pour atteindre une valeur positive aux temps longs avant de s'annuler à l'infini. Néanmoins ce cas est détectable expérimentalement en mesurant l'évolution de la contrainte après une variation de vitesse de cisaillement en forme de Dirac : si la contrainte est plus faible que la contrainte initiale sur une gamme de temps courts, alors le système peut présenter cette instabilité, alors que la contrainte stationnaire croît avec le taux de cisaillement. A notre connaissance, personne n'a observé de fluides simples présentant ces caractéristiques.

En général, et nous ne considérons pas d'autres cas par la suite, l'instabilité se manifeste lorsque la dérivée de la contrainte à l'équilibre par le taux de cisaillement s'annule, correspondant au cas où $\mathcal{L}\delta G(p=0)$ change de signe.

III Paramètre d'ordre non conservatif

Considérons le cas où le fluide a un paramètre d'ordre pouvant être couplé au gradient. Le cas le plus simple est le paramètre d'ordre nématique décrivant l'anisotropie du système composé d'objets anisotropes (polymères, bâtonnets etc...). Ce paramètre d'ordre varie avec le gradient, comme le montre l'existence de la biréfringence d'écoulement. Considérons simplement le cas où ce paramètre d'ordre S est un scalaire et prend la valeur S_0 pour un gradient de référence g_0 . Les variations de la contrainte autour de sa valeur

d'équilibre dépendent, en général, à la fois du gradient de cisaillement et du paramètre d'ordre :

$$\sigma = \sigma_0 + \partial_g \sigma_0 \delta g + \partial_s \sigma_0 \delta S \quad (7)$$

Les dérivées écrites ici représentent les variations de la contrainte soit pour une variation du gradient à paramètre d'ordre constant, soit pour une variation du paramètre d'ordre à gradient constant. L'équation de Navier Stokes s'écrit alors :

$$\rho \partial_t \delta g = \partial_{yy} (\partial_g \sigma_0 \delta g + \partial_s \sigma_0 \delta S) \quad (8)$$

Le paramètre d'ordre est aussi couplé au gradient :

$$\partial_t \delta S = -\zeta \delta S + \zeta \partial_g S_0 \delta g \quad (9)$$

où ζ est un taux de relaxation microscopique.

La résolution est simple, et après transformée de Laplace et de Fourier, on obtient :

$$\mathcal{L} \delta g_k(p) = \frac{\rho \delta g_k(t=0) - \frac{k^2 \partial_s \sigma_0 \delta S_k(t=0)}{p + \zeta}}{\rho p + k^2 (\mathcal{L} \delta G(p) + \frac{\zeta \partial_s \sigma_0 \partial_g S_0}{p + \zeta})} \quad (10)$$

Le pôle de cette fonction est similaire à celui du cas classique si l'on introduit la fonction effective :

$$\mathcal{L} \delta G_{eff} = \mathcal{L} \delta G + \frac{\zeta \partial_s \sigma_0 \partial_g S_0}{p + \zeta} \quad (11)$$

Cette fonction mémoire effective est celle que l'on extrait d'une mesure de la variation de contrainte suivant une petite variation de gradient. En transformée de Laplace :

$$\mathcal{L} \delta \sigma(p) = (\mathcal{L} \delta G(p) + \frac{\zeta \partial_s \sigma_0 \partial_g S_0}{p + \zeta}) \mathcal{L} \delta g(p) + \frac{\delta S(t=0)}{p + \zeta} \partial_s \sigma_0 \quad (12)$$

Le critère de stabilité $\mathcal{L} \delta G(p)_{eff} > 0$ doit donc être appliqué sur la variation effective (donc mesurée) de la contrainte. Les paramètres non conservatifs n'influent donc pas sur le

critère de stabilité de l'écoulement décrit précédemment. Nous montrons maintenant que la situation est différente lorsque le paramètre d'ordre est conservatif.

IV Paramètre d'ordre conservatif

IV a Diagramme de stabilité linéaire

Examinons le cas où le paramètre d'ordre couplé à l'écoulement est conservatif, c'est à dire que sa valeur moyenne ne peut varier. Soit ϕ ce paramètre d'ordre, qui est en général la concentration d'un des constituants. Dans ce cas l'équation reliant la concentration au gradient s'écrit :

$$\partial_t \delta \phi = \partial_{yy} (D \delta \phi + A \delta g) \quad (13)$$

L'espèce diffuse avec un coefficient de diffusion D , mais en présence d'un gradient de concentration, peut avoir tendance à migrer vers les région de fort gradient ($A < 0$) ou de faible gradient ($A > 0$). A priori, le signe de A est quelconque, alors que nous admettrons que nous sommes suffisamment loin d'une démixion spinodale pour avoir D positif. Remarquons que, dans le cas d'une solution, si le soluté tend à migrer des zones de faibles gradients vers les zones de forts gradients, cela signifie que la pression osmotique exercée sur le plan normal à y , π_y , dépend du gradient. Malheureusement, π_y n'est pas déductible à partir des mesures de forces normales, car celles ci ne permettent d'accéder qu'aux différences de pression osmotique $\pi_x - \pi_y$, $\pi_x - \pi_z$.

La transformée de Laplace de la variation de contrainte peut alors s'écrire :

$$\mathcal{L} \delta \sigma(p) = \mathcal{L} \delta G(p) \mathcal{L} \delta g(p) + \partial_\phi \sigma_0 \mathcal{L} \delta \phi(p) \quad (14)$$

On a supposé implicitement qu'à une fluctuation de concentration correspondait une fluctuation de contrainte simultanée, c'est à dire que $\mathcal{L} \partial_\phi \sigma_0(p)$ ne dépendait pas de p . Dans le cas contraire il suffit de le prendre dépendant de p sans pour autant modifier le formalisme suivant. Il ne reste plus qu'à écrire l'équation de Navier Stokes, transformée de Laplace et Fourier :

$$\rho(p \mathcal{L} \delta g_k(p) - \delta g_k(0)) = -k^2 (\mathcal{L} \delta G(p) \mathcal{L} \delta g_k(p)) + \partial_\phi \sigma_0 \mathcal{L} \phi_k(p) \quad (15)$$

La solution se déduit facilement :

$$\mathcal{L}\delta g_k(p) = \frac{\rho \delta g_k(0) - \frac{k^2 \partial_\phi \sigma_0 \delta \phi_k(0)}{p + k^2 D}}{\rho p + k^2 \mathcal{L}\delta G - \partial_\phi \sigma_0 \frac{Ak^4}{p + Dk^2}} \quad (16)$$

Comme précédemment, il s'agit de déterminer à quelle condition l'expression précédente peut avoir un pôle pour des valeurs positives de p . Dans le cas où D est positif, (c'est à dire où l'on a pas de démixion spinodale induite par écoulement) le système est instable si la condition :

$$q^2 + q\left(D + \frac{\mathcal{L}\delta G}{\rho}\right) + \frac{(D - \mathcal{L}\delta G) - A\partial_\phi \sigma}{\rho} = 0 \quad (17)$$

avec $q = \frac{p}{k^2}$

est vérifiée pour au moins une valeur positive de q . Le déterminant vaut :

$$\Delta = \left(D - \frac{\mathcal{L}\delta G}{\rho}\right)^2 + 4 \frac{A\partial_\phi \sigma}{\rho} \quad (18)$$

En étudiant le signe du produit et de la somme des racines, ainsi que le signe du déterminant, on obtient le diagramme de stabilité représenté sur la figure 2

Dans ce diagramme, on distingue deux zones de transition. Dans le cas 1, $A\partial_\phi \sigma_0$ est positif, alors on peut avoir une transition pour δG également positif. C'est à dire que cette transition ne sera en aucune façon prévisible à partir de l'étude des variations de contraintes en fonctions des variations de taux de cisaillement. Notamment, elles apparaîtront toujours pour des contraintes croissantes en fonction du gradient, et on aura des courbes d'écoulement avec rupture de pente (figure 3a). Par contre dans le cas 2, on aura la possibilité d'avoir une contrainte très légèrement décroissante avant d'avoir développement d'une instabilité, le couplage inertie, diffusion, viscosité locale stabilisant le système. Dans la pratique l'ordre de grandeur des valeurs négatives de η sont extrêmement faibles : les viscosités locales négatives doivent être de l'ordre de 10^{-7} cp. Pratiquement, on observera une viscosité locale nulle avant l'instabilité (figure 3b). Remarquons que dans le domaine 2, les

valeurs de q sont en fait imaginaires, c'est à dire que le système aura une réponse compliquée après un échelon de cisaillement.

IV b Discussion.

Lorsque $A\partial_\phi\sigma_0$ est positif (cas 1), une diminution locale de la concentration induit par exemple une fluidification de la zone. Donc cette zone est cisailée plus rapidement. Si de ce fait le soluté tend alors à migrer dans les zones voisines moins cisillées, alors la fluctuation de concentration se développe exponentiellement.

Dans le cas contraire (cas 2), si l'on néglige l'inertie ($\rho=0$), la viscosité locale étant négative, le système se sépare en deux zones s'écoulant à des gradients différents. Mais dans ces zones, il y a migration de sorte que la viscosité de la zone s'écoulant la plus rapidement devienne plus visqueuse. Donc dans la zone initialement en écoulement le plus rapide, la concentration se modifie de telle sorte que l'écoulement se ralentisse. C'est pourquoi le système est stabilisé par les termes inertiels et la croissance est complexe.

Dans cette analyse, le vecteur d'onde k n'est pas fixé : il vaut l'infini. En fait il est limité pour les faibles valeurs à la taille de l'échantillon. Pour les petites longueurs d'ondes, il est clair qu'il faut introduire un module de rigidité en dérivée quatrième de la concentration. Cela ne change rien à la valeur des seuils mais fixe la longueur d'onde du mode croissant le plus rapidement au delà du seuil d'instabilité.

V Conclusion

Dans cette note, nous montrons comment le couplage concentration gradient peut modifier la stabilité des écoulements de cisaillement simple. Sans couplage, l'instabilité n'arrive en général que pour une dérivée contrainte/gradient nulle, alors qu'avec couplage, selon le signe du couplage, l'instabilité peut arriver soit dans un domaine de contrainte croissante, soit dans un domaine de dérivée nulle. Ainsi on peut observer des rhéogrammes avec une courbe continue avec dérivée continue, comme dans les polymères fondus ou dans les micelles géantes classiques [6], soit une courbe avec discontinuité de la dérivée, et même avec une instabilité apparaissant dans un domaine parfaitement newtonien par ailleurs. Il est clair que l'étude de ces systèmes nécessite à la fois la mesure des transitoires de contrainte près des seuils, mais aussi la caractérisation de l'organisation spatiale à l'intérieur de

l'échantillon. Une étude mécanique de ce type de phénomène permettrait de mieux interpréter physiquement les mesures.

Références

- [1] M. Doi, S.F. Edwards *The Theory of Polymer Dynamics*" Oxford Science Publication (1986).
M. Doi, S.F. Edwards *J.C.S. Faraday II* **74** (1978) 1789.
- [2] O. Diat, D. Roux article soumis au Journal de Physique.
- [3] T. Baumberger, F. Perrot, D. Beysens *Phase Transitions* **31** (1991) 251.
C. Rangel-Nafaile, A.B. Metzner, K.F. Wissbrun *Macromolecules* **17** (1984) 1187.
- [4] S.T. Milner *Phys. Rev. Lett.* **66** (1991) 1477.
- [5] R.G. Larson *Rheol. Acta* **31** (1992) 497.
- [6] A. Khatory, F. Lequeux, F. Kern, S.J. Candau *Langmuir* **9** (1993) 1456.

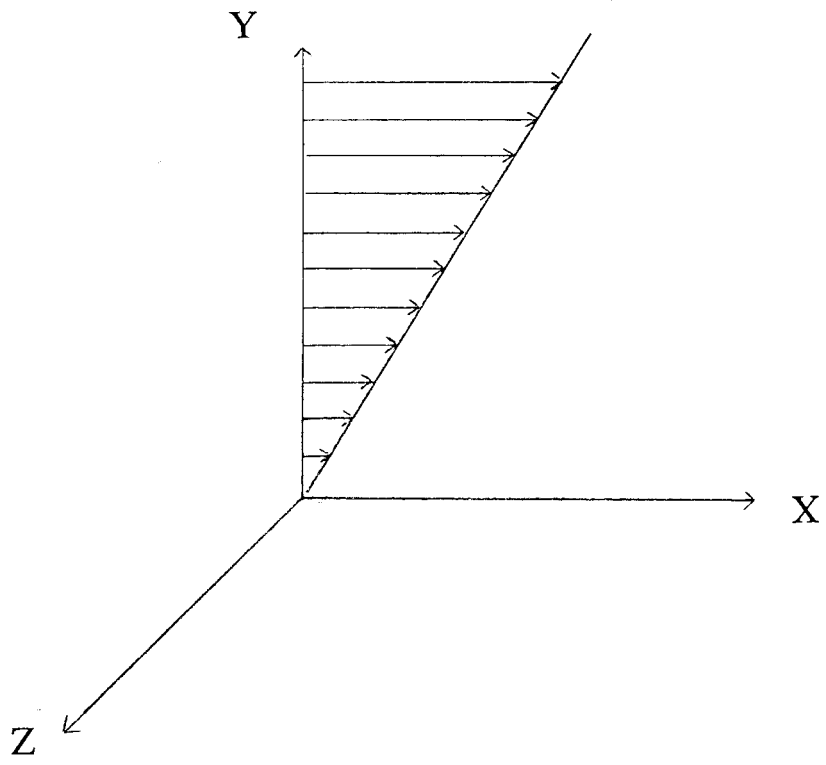


Figure 1a : Géométrie du système.

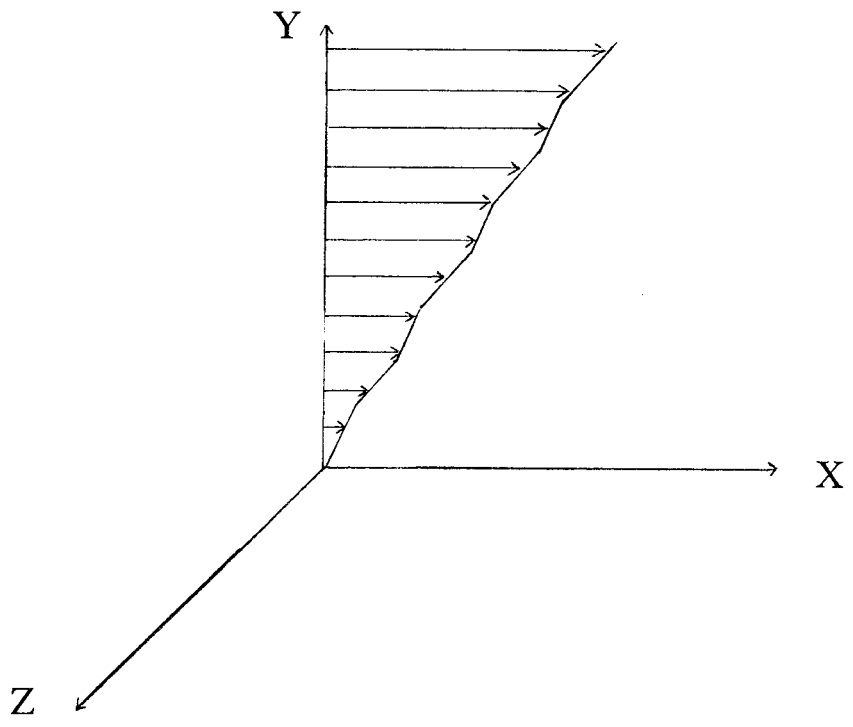


Figure 1b : Instabilité en bandes.

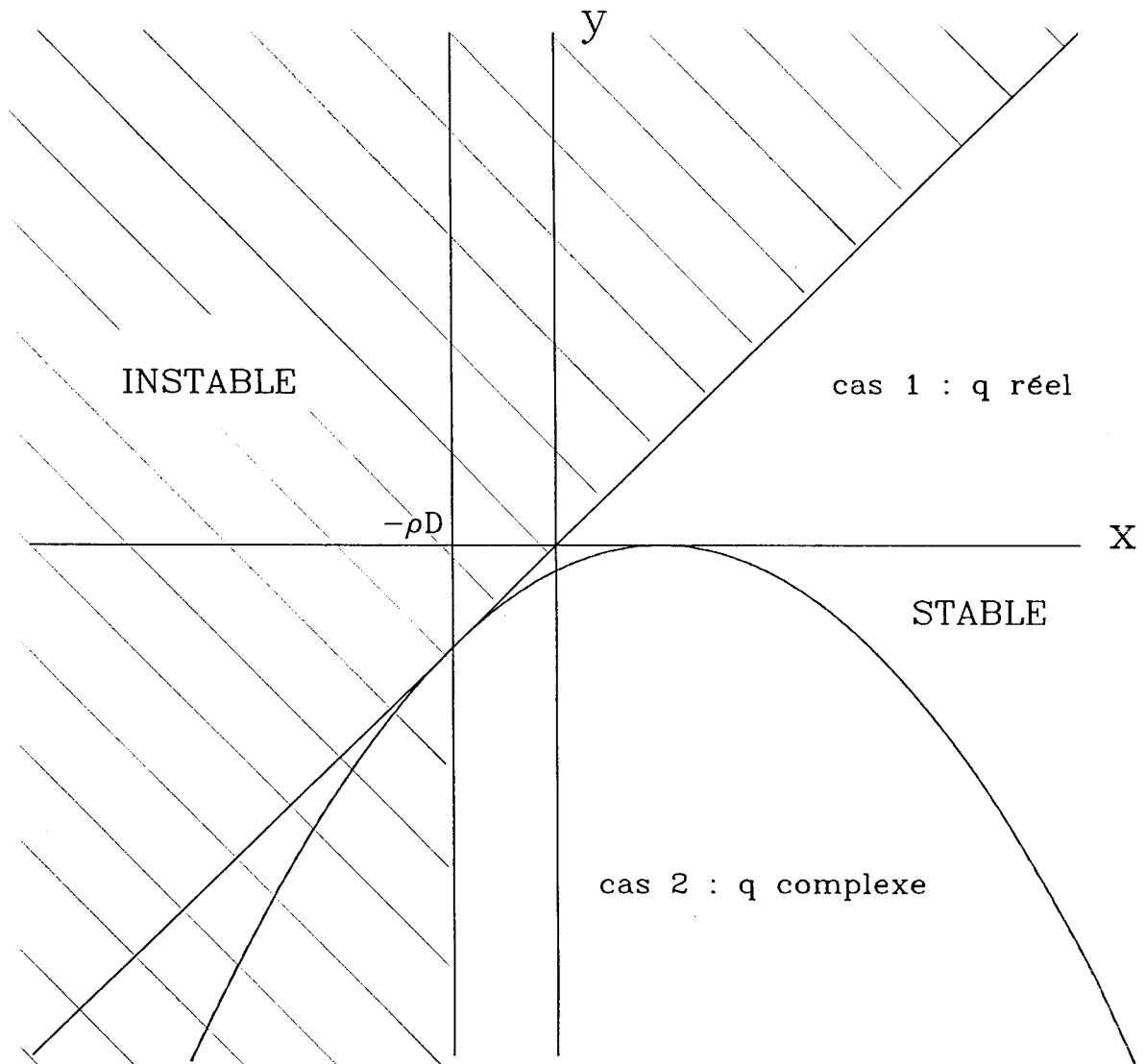


Figure2 : Diagramme de stabilité. $x = \min [\mathcal{L}\delta G(p)]$ $y = A/D \partial_\phi \sigma$

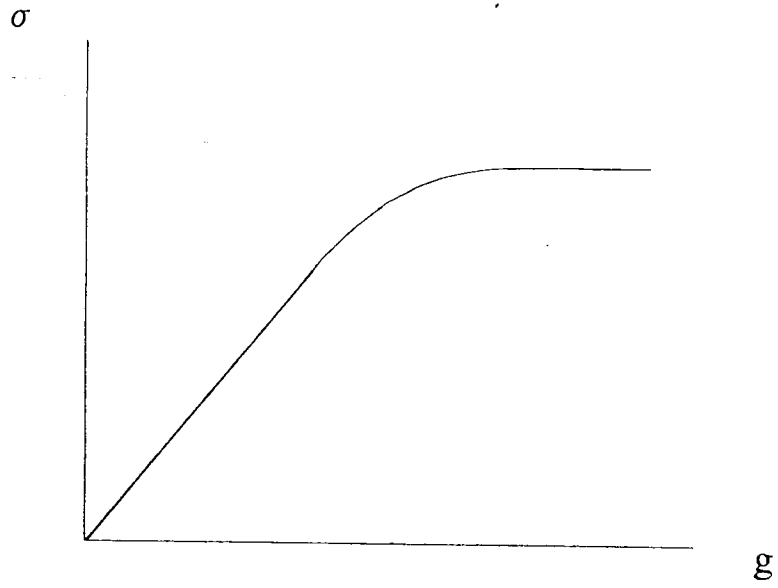


Figure 3a : Courbe d'écoulement correspondant au cas 1.

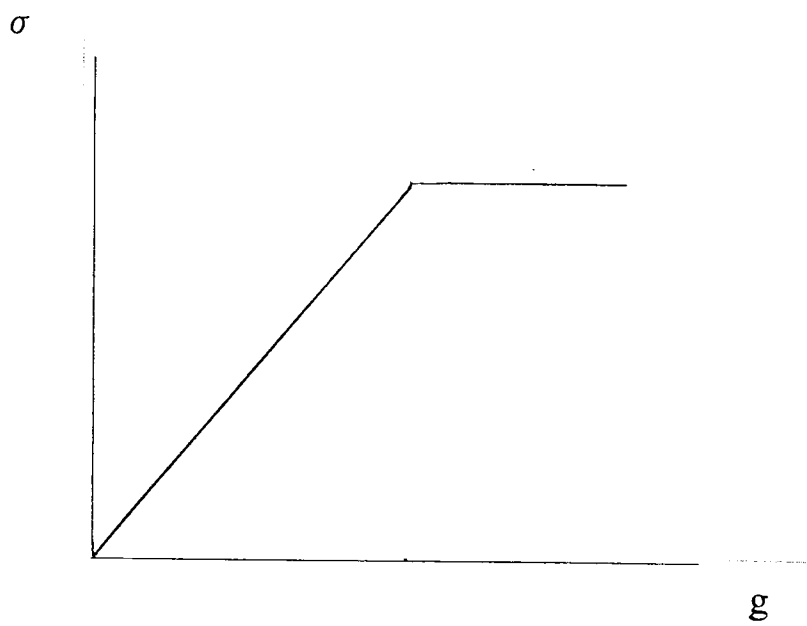


Figure 3b : Courbe d'écoulement correspondant au cas 2.

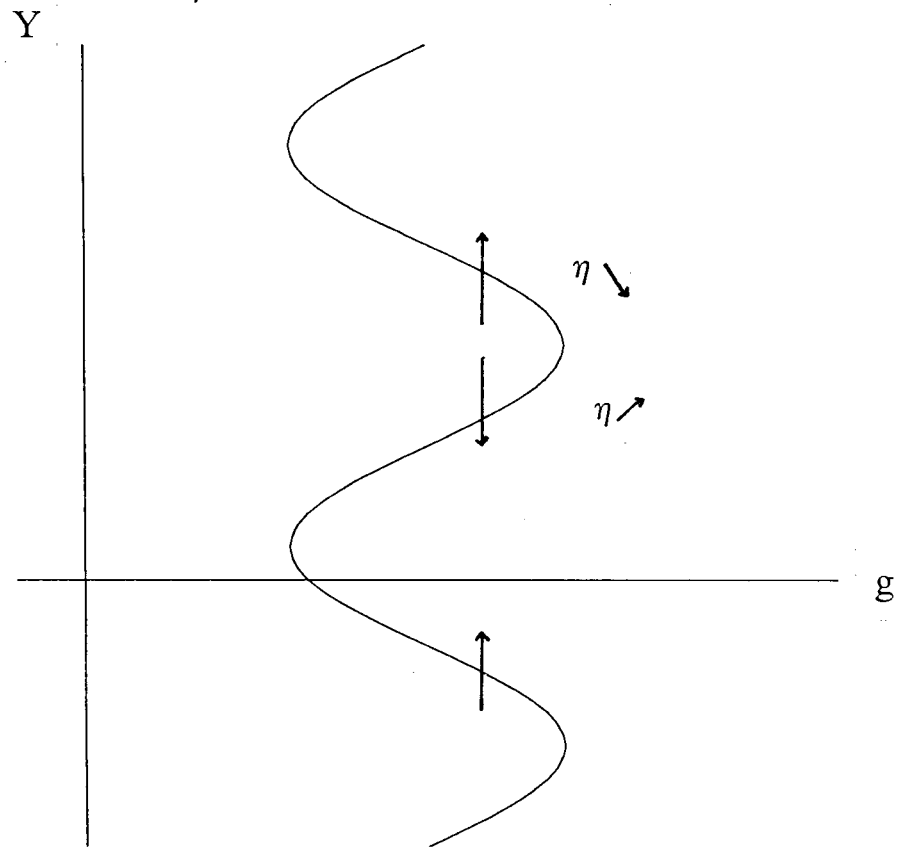


Figure 4a : Mécanisme Physique correspondant au cas 1.

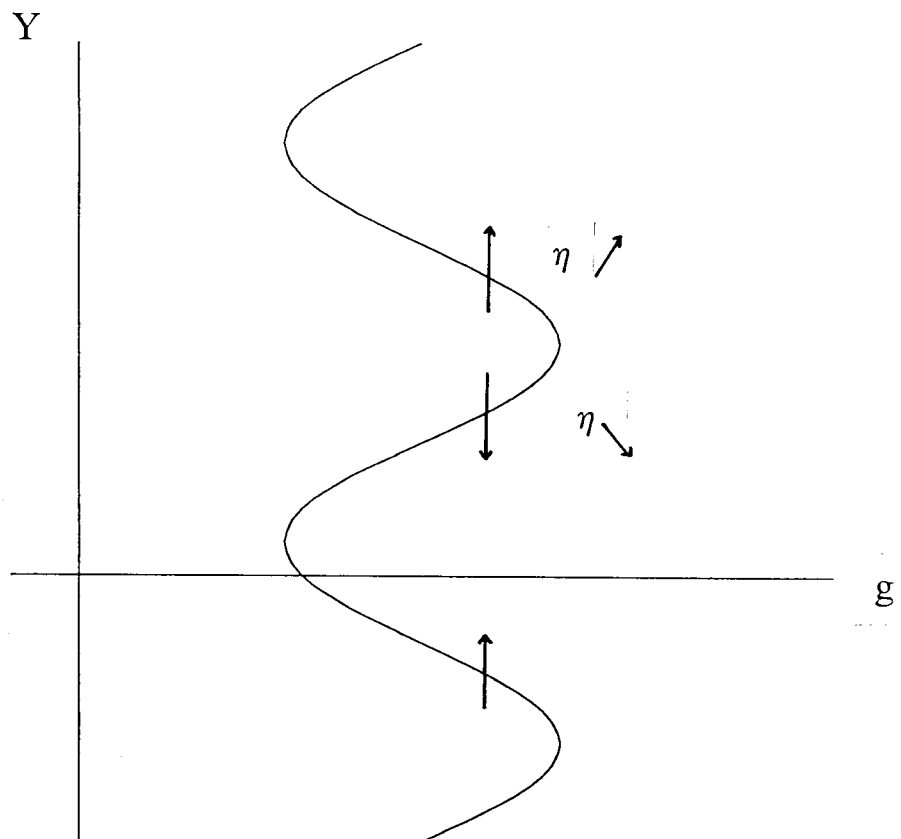


Figure 4b : Mécanisme Physique correspondant au cas 2.