

Modes d'instabilités observés pour des solutions viscoélastiques POE+(PEG+eau) en écoulement de Couette-Taylor

Faycal Kelai, Olivier Crumeyrolle, Nizar Abcha, Nouredine Latrache & Innocent Mutabazi

Université du Havre,
Laboratoire de Mécanique, Physique et Géosciences,
53, rue de Prony, BP 540, 76058 Le Havre
faycal.kelai233@univ-lehavre.fr

Résumé :

Les solutions de polymère de grande masse molaire sont souvent employées comme fluide modèle pour l'étude expérimentale des instabilités viscoélastiques. Nous rapportons le comportement de l'écoulement viscoélastique de Couette-Taylor de solutions semi-diluée ou diluées de polyoxyéthylène ($8 \cdot 10^6$ g/mol) dans, respectivement, soit un solvant de viscosité comparable à l'eau, soit un solvant {eau+ polyéthylène-glycol} environ quarante fois plus visqueux que l'eau. La solution semi-diluée est rhéofluidifiante, tandis que les solutions diluées présentent une rhéofluidification négligeable, et se rapprochent du cas des fluides de Boger. Le mode critique d'instabilité est soit constitué d'un régime inertio-élastique de spirales contrapropagatives, soit, pour la plus élevée des concentrations diluée étudiée, un régime de domaines désordonnés, relevant d'un comportement élastique. A partir de visualisations par nappe laser nous établissons des diagrammes spatio-temporels qui sont étudiés par traitement du signal. Nous discutons nos résultats par rapport aux travaux antérieurs.

Abstract :

Solutions of high-molecular-mass polymers are an important class of viscoelastic liquids for the experimental study of viscoelastic flow instabilities. We report the behaviour of the viscoelastic Couette-Taylor flow with polyethyleneoxide ($8 \cdot 10^6$ g/mol) for two cases: in one hand, a semi-dilute solution in a low viscosity solvent (similar to water), in the other hand dilute solutions in a solvent {water + polyethylene-glycol} roughly forty times more viscous than water. In the semi-dilute case the solution is shear-thinning, while dilute solutions exhibit negligible shear-thinning and are comparable to Boger fluids. The critical instability mode features counter-propagating waves -an inertio-elastic regime- or, for the highest dilute concentration, a flow pattern with disordered domains -an elastic regime. From laser light sheet visualisation we extract space-time diagrams. The main flow features are obtained by signal analysis. We compare our results with previous works.

Mots-clefs :

instabilités viscoélastiques; solutions de polymères; Couette-Taylor

1 Introduction

Les écoulements viscoélastiques peuvent présenter des comportements radicalement différents de ceux observés pour un fluide newtonien. L'absence pour les liquides viscoélastiques d'équations aussi universelles que les équations de Navier-Stokes pour les fluides newtoniens est une limitation majeure pour la prédiction des écoulements viscoélastiques. L'intérêt industriel pour les écoulements viscoélastiques a donc motivé de nombreux travaux expérimentaux.

Les solutions de polymères de forte masse molaire constituent des liquides viscoélastiques modèles. En effet il est possible de contrôler leurs propriétés (concentration, viscosité, etc.) et leur maniement en laboratoire est plus aisé que, par exemple, un plastique en fusion. Elles présentent aussi des applications immédiates dans le domaine de la réduction de traînée.

L'écoulement viscoélastique dans le système de Couette-Taylor constitue un des systèmes modèle pour l'étude des instabilités viscoélastique, et ceci depuis plus de quarante ans. Le système de Couette-Taylor est constitué de deux cylindres coaxiaux pouvant être mis en rotation indépendamment l'un de l'autre, et entre lesquels est emprisonnée une couche de fluide. Il a fait l'objet de nombreuses études dans le cas des fluides newtoniens. Dans le cas le plus simple où seul le cylindre intérieur est en rotation, à partir d'une certaine vitesse de rotation critique un fluide newtonien bifurque depuis l'écoulement de Couette circulaire vers un régime stationnaire de rouleaux axisymétriques contrarotatifs, nommés rouleaux de Taylor. Outre son intérêt en rhéométrie, la simplicité géométrique du système de Couette-Taylor et son grand nombre de symétries en font un système hydrodynamique modèle de l'étude de la transition vers la turbulence dans des systèmes confinés. Dans le cas de liquides viscoélastiques, les études s'attachèrent historiquement à déterminer théoriquement et/ou expérimentalement les effets de la viscoélasticité sur les modes d'instabilités newtoniens, tels les rouleaux de Taylor (ex.: Ginn & Denn (1969)). Mais divers travaux suggéraient que des comportements nouveaux étaient possibles (ex.: Friebe (1976)). Une étape majeure fut franchie quand en 1989 Larson *et al.* (1990) découvrirent que les effets élastiques pouvaient déstabiliser l'écoulement. On parle d'instabilités purement élastiques, caractérisées au seuil par un comportement oscillant non-axisymétrique et désordonné, observables pour des nombres de Reynolds arbitrairement faibles si on peut augmenter le temps de relaxation (ex.: en augmentant la masse molaire, la concentration, la viscosité du solvant). Larson *et al.* ont établi l'existence de ce régime à la fois expérimentalement par l'étude de fluides très élastiques dit de Boger (ex.: un polyisobutylène en solution très visqueuse) et théoriquement par une étude de stabilité linéaire du modèle d'Oldroyd-B. Le mécanisme d'instabilité purement élastique a été précisé et généralisé pour des amplitudes finies –toujours avec le modèle d'Oldroyd-B– par Groisman et Steinberg (1998), qui ont vérifié leur critère théorique en étudiant le cas de solutions élastiques mais moins visqueuses que les fluides de Boger (polyacrylamide en solution aqueuse sucrée). En faisant varier la concentration, la température, la proportion de sucre, ces auteurs ont notamment vérifié l'influence des viscosités respectives du solvant et de la solution sur la vitesse critique de rotation. Ces travaux ont conduit à la découverte du régime de turbulence élastique (Groisman et Steinberg (2000)).

Un certain nombre de régimes dits inertio-élastiques ont été mis en évidence. Ils se caractérisent par un mode critique d'instabilité encore largement contrôlé par les forces inertielles mais qualitativement différent du cas newtonien. En particulier il a été observé des régimes formés de spirales contrapropagatives dans la direction axiale (ex : Groisman et Steinberg (1996), Baumert et Muller (1999)). Dans le cas de solution de polyoxyéthylène (POE) peu visqueuses, semi-diluées et rhéofluidifiantes, Crumeyrolle *et al.* (2002) ont observé que les modes harmoniques associés au couplage entre les spirales contrapropagatives pouvaient dominer l'écoulement au seuil. Dans ce cas le temps de relaxation pertinent est, plutôt qu'un temps moléculaire, celui de la solution. Dans ce travail nous rapportons le comportement critique de deux types de solutions de polymères à base de POE et comparons aux travaux antérieurs.

2 Solution de polymère et géométrie expérimentale

Nous employons des solutions de POE (Aldrich, 8.10^6 g/mol), obtenues avec des solvants différents. La concentration critique de recouvrement en solution aqueuse du POE (Crumeyrolle *et al.* (2002)) est d'environ 200 ppm (parties par million en masse).

Dans le cas semi-dilué, 1200 ppm de POE sont dissoutes dans un solvant de viscosité $\eta_s = 0,93$ mPa.s, constitué à 95% d'eau de Volvic et à 5% d'alcool isopropylique. Ces solutions sont préparées en mélangeant le POE dans l'alcool isopropylique, puis en dispersant le mélange dans l'eau. La solution obtenue est une solution semi-diluée et rhéofluidifiante. Les variations de viscosité ont été mesurées (fig. 1a) avec un rhéomètre AR 2000 (TA Instruments) et peuvent être ajustées par la loi de Carreau $\eta = \eta_0(1+(k\dot{\gamma})^2)^{(m-1)/2}$ où $\eta_0 = 26,4$ mPa.s est la viscosité au

plateau newtonien observé à faible taux de cisaillement, $k=0,69$ s un temps caractéristique de la transition vers le régime de rhéofluidification et $m-1 = -0,26$ la pente de ce régime. On remarque que la viscosité de la solution est très grande par rapport à la viscosité du solvant.

Dans les cas dilués, 50 ppm ou 100 ppm de POE sont dissoutes dans un solvant de viscosité $\eta_S = 41,8$ mPa.s, obtenu à partir d'eau de Volvic, d'alcool isopropylique et de polyéthylène-glycol (PEG, Fluka, 20000 g/mol), employé comme agent viscosifiant. Ces solutions sont préparées en dispersant la poudre de POE dans un solvant constitué de 2,5% d'alcool isopropylique et 97,5% d'eau mélangé à 600g de PEG. Les solutions diluées obtenues présentent une rhéofluidification négligeable (fig 2b). Les viscosités obtenues sont, respectivement pour 50 ppm et 100 ppm, de $\eta_P = 47,4$ mPa.s et $\eta_P = 53,4$ mPa.s. Ces solutions se rapprochent de certains travaux antérieurs avec du polyacrylamide ou du polyisobutylène, à la fois de par la faible concentration (solution diluée), par l'absence de rhéofluidification et par la viscosité du solvant, qui constitue la contribution principale à la viscosité totale de la solution.

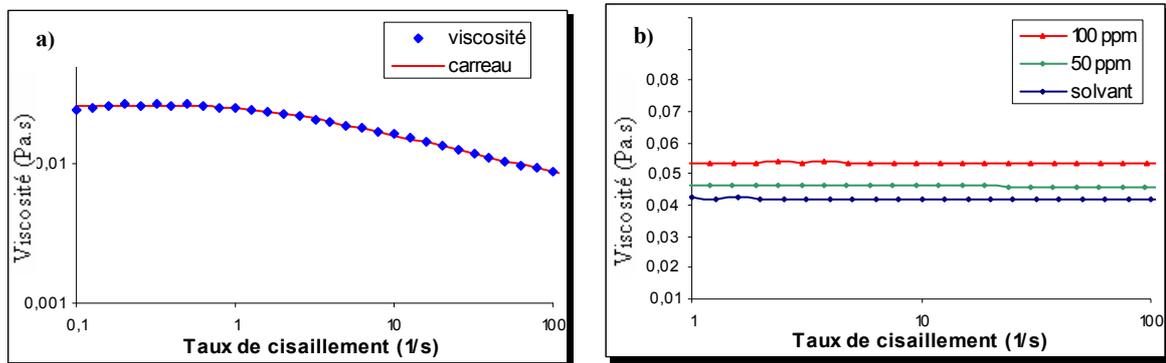


FIG. 2 – Viscosité de cisaillement des solutions de polymères : a) semi-diluée, b) diluées.

Les solutions reposent pendant 5 jours au froid (environ 7°C) pour favoriser la dissolution. Après une nuit à température ambiante, les solutions sont homogénéisées à l'aide d'un agitateur magnétique pour minimiser la présence d'agrégats, avant d'être employées dans l'expérience.

Les solutions sont placées dans l'entrefer situé entre un cylindre intérieur noir, en aluminium anodisé, de rayon $a = 4$ cm et un cylindre extérieur de rayon $b = 5$ cm, en verre. Le rapport d'aspect est de 45,9 et le rapport des rayons vaut $d/a = (b-a)/a = 0,8$. Le cylindre extérieur est maintenu immobile. Ce dernier est isolé thermiquement par une cuve rectangulaire en plexiglas remplie d'eau. La géométrie rectangulaire du bain favorise les observations optiques. Le cylindre est piloté à l'aide d'un servomoteur qui permet de réguler la vitesse de rotation angulaire Ω du cylindre intérieur à 0,063 rad/s près. L'expérience est réalisée à la température ambiante, très peu variable au cours d'une acquisition. L'éventuelle évolution de la température entre les acquisitions est mesurée.

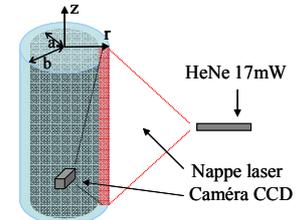


FIG. 2 – Dispositif expérimental.

On ajoute à nos solutions 2% (en volume) de Kalliroscope AQ1000. Il s'agit d'une solution diluée de plaquettes réfléchissantes anisotropes ($30\mu\text{m} \times 6\mu\text{m} \times 0,07\mu\text{m}$), sans effet sur les propriétés rhéologiques des solutions. La visualisation de l'écoulement est obtenue par une coupe laser verticale de l'entrefer de 17 à 23 cm de haut. Une caméra CCD 2D (1600x1200 pixels) enregistre l'intensité lumineuse $I(r,z,t)$ à la cadence de 12 images par seconde pendant 15 minutes. A partir de ces acquisitions, on peut extraire des diagrammes spatio-temporels $I(z,t)$ à r fixé. Ces diagrammes sont étudiés par traitement du signal. Chaque expérience est conduite en augmentant progressivement la vitesse de rotation Ω , et donc le taux de cisaillement moyen imposé $\dot{\gamma} = \Omega a/d$, et en respectant des paliers d'attente de 10 minutes.

3 Résultats

Pour les faibles valeurs de vitesse de rotation du cylindre, l'écoulement observé est un écoulement de Couette circulaire dans tous les cas. Le premier mode d'instabilité observé (fig. 3) est, pour 1200 et 50 ppm, un régime présentant des ondes spirales axialement contrapropagatives, comparable aux régimes inertio-élastiques nommés $(R)SW$ dans la littérature.

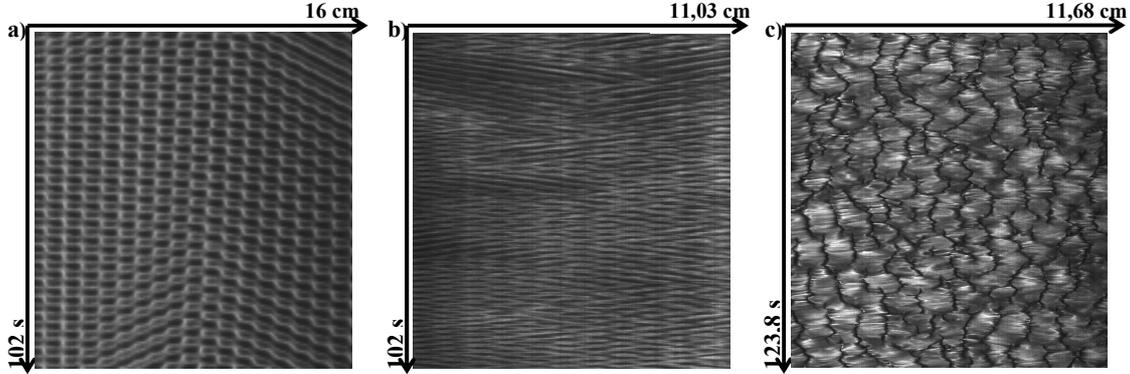


FIG. 3 – Diagrammes spatio-temporel d'intensité $I(z,t)$: a) 1200ppm , b) 50ppm, c) 100 ppm

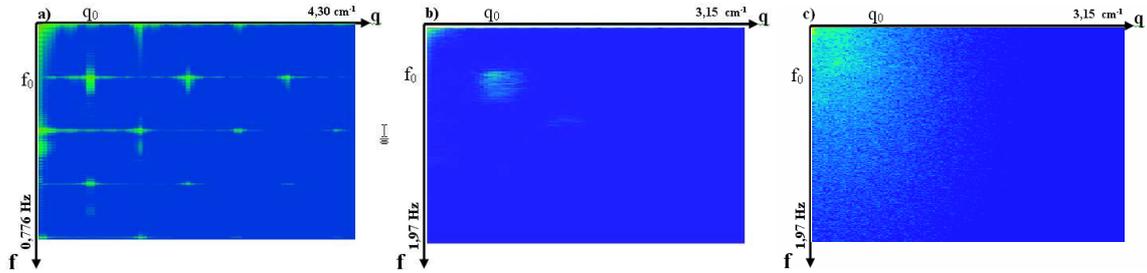


FIG. 4 – Spectres de puissance 2D de $I(z,t)$: a) 1200ppm , b) 50ppm, c) 100 ppm

Pour 1200 ppm le seuil est observé à un nombre de Taylor critique effectif $Ta_c = Re_c \cdot (d/a)^{0.5} = 41,8$, où $Re_c = \dot{\gamma}_c \tau_v$ est le nombre de Reynolds critique effectif dans l'entrefer, calculé avec la viscosité rhéofluidifiée $\eta(\dot{\gamma}_c)$ observée pour un taux de cisaillement égal à celui au seuil, soit $\dot{\gamma}_c = 12,56 \text{ s}^{-1}$. $\eta(\dot{\gamma}_c)$ n'est que de 15 mPas, et le temps de diffusion visqueuse effectif $\tau_v = \rho d^2 / \eta(\dot{\gamma}_c)$ est de 6,66 s. La période fondamentale des ondes spirales est mesurée à $\tau_F = 5,39 \text{ s}$. Pour 50 ppm le seuil est observé à $Ta_c = 42,2$, où la viscosité employée est la viscosité de la solution, 47,4 mPas. Le temps de diffusion visqueuse vaut $\tau_v = 2,15 \text{ s}$. La période fondamentale des ondes spirales est mesurée à une valeur moyenne $\tau_F = 2,36 \text{ s}$.

Pour 100 ppm le seuil est observé à $Ta_c = 30,2$, où la viscosité employée est la viscosité de la solution, 53,4 mPas. Le temps de diffusion visqueuse vaut $\tau_v = 1,87 \text{ s}$. Le motif présente des domaines semblables à certains motifs élastiques rapportés dans la littérature. Aucune fréquence caractéristique ne peut-être relevée sur le spectre en raison du désordre.

Pour les solvants, le mode critique d'instabilité est bien formé de rouleaux de Taylor.

Le motif spatio-temporel observé pour 50 ppm est déjà un peu désordonné. Mais le spectre de puissance 2D (fig 4b) obtenu montre un étalement spectral limité autour du mode fondamental, à (q_0, f_0) . Pour 100 ppm on ne distingue plus de fréquence remarquable. Pour 1200 ppm on note la présence d'harmoniques, notamment $(2q_0, 0)$ et $(0, 2f_0)$ qui correspondent au couplage entre les ondes contrapropagatives (c.f. Crumeyrolle *et al.* (2002)). Au contraire ces harmoniques sont absentes à 50 ppm. L'examen des spectres 2D associés à différentes positions radiales et différentes vitesses de rotation ne montre pas plus d'harmoniques de couplage pour 50 ppm, sauf une faible harmonique $(2q_0, 0)$ à $r = a + 0,9d$. Les amplitudes spatio-temporelles $A(z,t)$, obtenues

nues par démodulation complexe, des ondes droites et gauches sont rapportées fig. 5 pour 1200 ppm. On note une alternance régulière nette : là où une onde domine, l'autre est faible. Ceci confirme le fort couplage entre les spirales contrapropagatives. Aucune alternance de ce type n'a été observée pour 50 ppm.

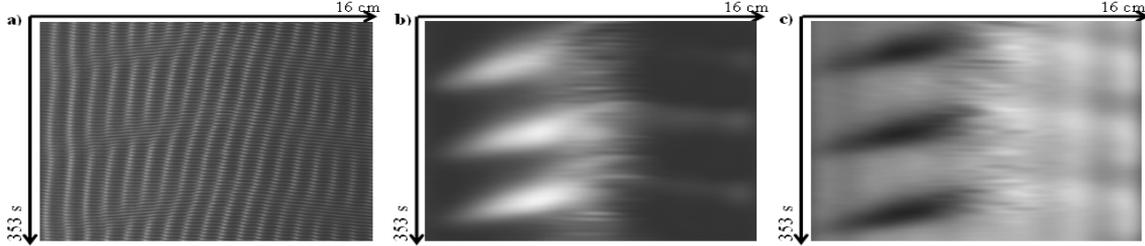


FIG. 5 – $c = 1200$ ppm : a) Diagramme spatio-temporel $I(z,t)$ pour une durée de 353 s, b/c) Diagramme spatio-temporel d'amplitude $A(z,t)$ pour l'onde gauche/droite.

4 Discussion et conclusion

Les nombres de Taylor critiques sont dans tous les cas inférieurs au nombre de Taylor critique newtonien $Ta_{c,N} = 47,3$. L'écoulement de Couette circulaire est donc ici toujours déstabilisé par la viscoélasticité.

Pour la solution semi-diluée, très éloignée d'un fluide de Boger ($\eta - \eta_S \gg \eta_S$), on a observé des spirales contrapropagatives fortement couplées. Pour une solution diluée (50 ppm) plus proche d'un fluide de Boger, on a observé des spirales contrapropagatives mais sans couplage. Ceci est cohérent avec les résultats des travaux antérieurs (ex : Baumert et Muller (1999)), qui n'avaient pas noté d'harmoniques de couplages.

Soit τ_M le temps de relaxation moléculaire, défini par $\tau_M = (\eta - \eta_S)/nRT$, avec n le nombre de moles de molécules de POE par unité de volume dans la solution, R la constante des gaz parfaits, T la température thermodynamique, η la viscosité de la solution (η_0 dans le cas d'une solution rhéofluidifiante) et η_S la viscosité du solvant. Ce temps est proche des temps de relaxation obtenus avec des mesures de la première différence de contraintes normales, habituellement employées dans les travaux basés sur Oldroyd-B et l'approche « fluide de Boger ». Pour une solution rhéofluidifiante, τ_S , le temps de relaxation de la solution, est défini comme étant le temps associé à une chute de 5% de la viscosité de la solution, $\tau_S = k(0,95^{-2/n} - 1)^{-0,5}$, et est usuellement un ordre de grandeur plus grand que τ_M . Le nombre de Weissenberg critique est défini par $We_{cS} = \dot{\gamma}_c \cdot \tau_S$ ou $We_{cM} = \dot{\gamma}_c \cdot \tau_M$. Ce nombre adimensionnel mesure la compétition entre l'élasticité et la déformation de cisaillement. Le nombre élastique est défini par $E_{cM} = We_{cM}/Re_c = \tau_M / \tau_v$ ou par $E_{cS} = We_{cS}/Re_c = \tau_S / \tau_v$ avec τ_v le temps de diffusion visqueuse (effectif pour 1200 ppm) déjà introduit. Il mesure la compétition entre le comportement élastique et le comportement visqueux. Enfin nous utilisons $K_{cM} = (d/a)^{0,5} \cdot ((\eta - \eta_S)/\eta)^{0,5} \cdot We_{cM}$ le nombre adimensionnel qui caractérise la transition vers l'instabilité purement élastique tel qu'introduit par Groisman et Steinberg (1998), avec η la viscosité effective au seuil pour 1200 ppm. Les valeurs critiques, *i.e.* obtenues aux seuils, sont rapportées tableau 1.

C (ppm)	τ_M (s)	τ_S (s)	τ_v (s)	τ_F (s)	Re_c	Ta_c	We_{cM}	We_{cS}	E_{cM}	E_{cS}	K_{cM}	K_{cS}
1200	0,069	0,992	6,66	5,39	83,7	41,8	0,86	12,5	0,010	0,15	0,42	6,05
50	0,298	NA	2,15	2,36	84,4	42,2	11,7	NA	0,14	NA	1,26	NA
100	0,372	NA	1,87	NA	60,3	30,2	12,0	NA	0,20	NA	2,78	NA

TAB. 1 – Temps caractéristiques et nombres adimensionnels critiques.

Il faut noter d'une part les faibles valeurs des nombres élastiques (0,2 ou moins) et, pour 1200 ppm et 50 ppm, la proximité des valeurs de τ_F et τ_v , respectivement la période fondamentale des spirales et le temps de diffusion visqueuse (effectif pour 1200 ppm). Les spirales contrapropagatives sont donc bien inertio-élastiques. Par contre à 100 ppm on note une chute nette du nombre de Taylor critique, cependant que $K_{cM} = 2,78$ est un peu supérieur aux valeurs critiques de 1,36 et 1,64 observées par Groisman et Steinberg (1998) pour le régime purement élastique. En remplaçant $(\eta - \eta_S)/\eta$ par $(\eta - \eta_S)/\eta_S$ on obtient l'expression de K_{cM} prédite par l'analyse de stabilité linéaire de Larson *et al.* (1990). Pour 100 ppm la valeur observée est de 3,14, ce qui est un peu inférieur à la valeur théorique prédite à 3,194. La similitude du motif et la proximité de K_{cM} avec les valeurs critiques déjà connues confirment que le régime observé est bien élastique. Toutefois nous n'avons pas observé d'hystérésis, contrairement à Groisman *et al.* (1998) qui rapportent un seuil plus bas, à $K_{cM} = 0,86$ quand ils observent la transition en diminuant la vitesse de rotation. K_{cS} donne pour 1200 ppm une valeur supérieure aux valeurs seuil déjà connues. Ceci montre que τ_S ne pilote pas les différences de contraintes normales N_1 . De fait, même en régime semi-dilué (900 ppm, Crumeyrolle *et al.* (2002)) les mesures de N_1 sont associées à des temps de relaxation au moins un ordre de grandeur inférieur à τ_S . Pour 1200 ppm le temps de relaxation de la solution τ_S est bien plus élevé que le temps de relaxation moléculaire τ_M . On peut donc supposer que τ_S ne peut pas piloter la dynamique purement élastique mais peut piloter la dynamique inertio-élastique. Et en effet on remarque que les valeurs obtenues pour We_{cS} et E_{cS} pour 1200 ppm sont très proches de respectivement We_{cM} et E_{cM} obtenues pour 50 ppm. Les valeurs critiques des nombres de Taylor sont aussi très proches, ce qui conforte la comparaison entre les deux régimes de spirales contrapropagatives observées.

On peut donc conclure qu'un régime d'ondes spiralées contrapropagatives peut être observé pour un nombre de Weissenberg critique proche de 12, un nombre élastique critique d'environ 0,15, et un Taylor critique d'environ 42. Dans le cas de solutions rhéofluidifiantes, les ondes spiralées contrapropagatives présentent un couplage significatif.

Références

- Baumert, B.M., Muller, S.J. 1999 Axisymmetric and non-axisymmetric elastic and inertio-elastic instabilities in Taylor-Couette flow. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **83**, 33-69.
- Crumeyrolle, O., Mutabazi, I., Grisel, M. 2002 Experimental study of inertio-elastic Couette-Taylor instability modes in dilute and semi-dilute polymer solutions. *Phys. Fluids* **14**(5), 1681-1688.
- Friebe, H. 1976 Das stabilitätsverhalten verdünnter lösungen sehr langkettiger hochpolymerer in der couette-strömung. *Rheol. Acta* **15**, 329-355.
- Ginn, R.F., Denn, M.M. 1969 Rotational stability in viscoelastic liquids: Theory. *AIChE J.* **15**(3), 450-454.
- Goisman, A., Steinberg, V. 1996 Couette-Taylor flow in a dilute polymer solution. *Phys. Rev. Lett.* **77**(8), 1480-1483.
- Groisman, A., Steinberg, V. 1998 Mechanism of elastic instability in Couette flow of polymer solutions: Experiment. *Phys. Fluids*, **10**(10), 2451-2463.
- Groisman, A., Steinberg, V. 2000 Elastic turbulence in a polymer solution flow. *Nature* **405**, 53.
- Larson, R.G., Shaqfeh, E.S.G., Muller S.J. 1990 A purely elastic instability in Taylor-Couette flow. *J. Fluid Mech.* **218**, 573-600.