



# Imagerie ultrasonore dans les matériaux mous

Christophe Perge

► **To cite this version:**

Christophe Perge. Imagerie ultrasonore dans les matériaux mous. Autre [cond-mat.other]. Ecole normale supérieure de lyon - ENS LYON, 2014. Français. <NNT : 2014ENSL0913>. <tel-01073593>

**HAL Id: tel-01073593**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01073593>**

Submitted on 10 Oct 2014

**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.

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE DE LYON  
Laboratoire de Physique



THÈSE

en vue d'obtenir le grade de :

**Docteur de l'Université de Lyon, délivré par l'École Normale Supérieure de Lyon**

**Spécialité : Physique**

**École Doctorale de Physique et d'Astrophysique de Lyon**

Soutenance prévue le 3 Juillet 2014 par :

**Christophe PERGE**

---

**Imagerie ultrasonore  
dans les matériaux mous**

---

sous la direction de :

**Sébastien MANNEVILLE**

Après avis de :

Anke LINDNER Professeure, Université Paris Diderot  
Laurence RAMOS Directrice de recherche au CNRS, Université Montpellier 2

Devant la commission d'examen formée de :

Catherine BARENTIN	Professeure, Université Lyon 1	Président
Anke LINDNER	Professeure, Université Paris Diderot	Rapporteur
Sébastien MANNEVILLE	Professeur, Université Lyon I – ENS de Lyon	Directeur
Jordi ORTIN	Professeur, Université de Barcelone	Examineur
Laurence RAMOS	Directrice de recherche au CNRS, Université Montpellier 2	Rapporteur
Nicolas TABERLET	Maître de conférence, Université Lyon I – ENS de Lyon	Co-encadrant



À mes parents,  
et à Cindy.



*Le bonheur n'est réel que lorsqu'il est partagé.*

Christopher McCandless (1992).



## Remerciements

Ce travail de thèse s'est déroulé au laboratoire de physique de l'École Normale Supérieure de Lyon sous la direction de Nicolas TABERLET et de Sébastien MANNEVILLE. Je tiens donc tout d'abord à les remercier chaleureusement pour leur encadrement et leur disponibilité. Durant ces trois années, ils ont toujours été présents quotidiennement pour m'aiguiller dans mes travaux. Leurs conseils, leurs suggestions et leurs idées pertinentes m'ont beaucoup aidé lorsque j'en avais besoin. Leur passion pour la physique a été pour moi une grande source de motivation. Je tiens à remercier plus particulièrement Sébastien pour m'avoir accordé sa confiance et pour m'avoir proposé ce financement. D'un point de vue personnel, je les remercie pour tous les excellents moments passés en dehors du laboratoire et notamment au cours des différents voyages que nous avons effectués ensemble, Lisbonne, Montréal, Bordeaux, Paris et bien d'autres.

Je remercie les membres du jury d'avoir accepté d'évaluer mon travail et plus particulièrement Catherine BARENTIN d'en avoir été la présidente. Je remercie également Laurence RAMOS et Anke LINDNER d'avoir été rapporteurs. Leur lecture attentive de mon manuscrit a conduit à des remarques très intéressantes pour la suite de ce travail. Merci également à Jordi ORTIN pour ses questions pertinentes posées durant la soutenance.

Je voudrais remercier mes collègues de bureau, les anciens comme les nouveaux : Baptiste PERCIER, avec qui j'ai partagé de bons moments dans la mezzanine lors de nos fameuses parties de Counter-Strike, mais également Mathieu LEOCMACH et Pierre LIDON, qui ont su me supporter au quotidien et notamment durant la rédaction du manuscrit où je ne devais pas être facile à vivre. Merci également à Thomas GALLOT et Vincent GRECARD, qui grâce à leurs connaissances en programmation, m'ont permis de débiter ma thèse dans les meilleures conditions possibles. Sans eux le dialogue avec la technique d'imagerie ultrasonore aurait été beaucoup plus compliqué et le traitement des données beaucoup plus lent. Je remercie les postdoc et nouveaux permanents avec qui j'ai interagi. En plus de Thomas et Mathieu déjà cités, Thomas GIBAUD et Thibaut DIVOUX ont été des éléments précieux pour l'étude des gels de noir de carbone et des gels de protéine. Leurs conseils et les discussions que j'ai pu avoir avec eux ont été de véritables atouts tout au long de ma thèse. Enfin Marc-Antoine FARDIN a été bien plus qu'un collaborateur, il est devenu un véritable ami. Merci à toi pour tes compétences, ta bonne humeur, ta pédagogie et ta disponibilité! Rendez-vous en région parisienne pour d'autres aventures comme par exemple tes interventions dans ma classe!

Je suis aussi reconnaissant envers l'ensemble du laboratoire : notre directeur Thierry DAUXOIS qui a toujours su être à l'écoute et très attentif au bien être des doctorants, l'atelier de mécanique (Marc, Franck, Denis et Fred) qui, grâce à leur savoir faire, nous ont permis de façonner les différentes pièces du montage expérimental, Angel pour les parties de foot, Baptiste dit le blond pour les matches de volley, les membres du laboratoire junior : Marine, Christophe et les autres, mais aussi Jean-Christophe GÉMINARD, mon premier maître de stage, qui m'a donné goût à la recherche, ainsi que toutes les autres personnes avec qui j'ai pu discuter ou travaillé (Ernesto, Simona, Baptiste dit le grand...), que j'oublie et qui sont hélas trop nombreuses pour être citées et je les prie de m'en excuser.



Je voudrais également remercier, Philippe ODIER, Peter HOLDSWORTH ainsi que Sébastien PAULIN, pour m'avoir permis d'effectuer mes heures de monitorat au sein de la préparation à l'agrégation de physique ainsi qu'en tant que colleur pour la classe passerelle. Cela a été pour moi une réelle expérience et un premier contact avec l'enseignement qui me sera bien utile pour la suite.

J'en profite également ici pour remercier toute la bande de l'ENS : Paul, Fred, Dam, Fab, Oliv', Bapt, BienJu, Pierre et leurs compagnes. Merci à eux pour leur amitié profonde et pour tous les bons moments passés ensemble ! Merci également à Guillaume et Gladys pour avoir été un réel repère pour moi depuis le lycée.

Enfin j'aimerais remercier mes parents, Christine et Claude, mes sœurs, Stéphanie et Céline, ainsi que toute ma famille, pour m'avoir soutenu depuis ma plus tendre enfance. Je vous dois tant. Mes dernières pensées sont destinées à toi Cindy. Merci à toi ma chérie. Merci pour tout.

# Table des matières

INTRODUCTION GÉNÉRALE	13
<b>I ÉTUDE D'UN FLUIDE COMPLEXE</b>	<b>17</b>
<b>1 Écoulements de fluides complexes</b>	<b>19</b>
1.1 Un exemple de fluide complexe : la « silly-putty »	20
1.2 Étude rhéologique d'un fluide complexe	21
1.2.1 Principe de la rhéologie	21
1.2.2 Description d'un rhéomètre	23
1.2.3 La géométrie cône-plan	24
1.2.4 La cellule de Couette	24
1.2.5 Courbe d'écoulement : Rhéologie non linéaire	25
1.2.6 Thixotropie, rhéopexie et nombre de Deborah	27
1.2.7 Cisaillement oscillant : rhéologie linéaire	29
1.2.8 Effets élastiques, contraintes normales et viscosité élongationnelle	32
1.3 Couplage microstructure-écoulement : écoulements hétérogènes	34
1.3.1 Glissement aux parois	35
1.3.2 Bandes de cisaillement	35
1.3.3 Coexistence fluide-solide	36
1.3.4 Nécessité de mesures locales résolues en temps	36
<b>2 Techniques d'imagerie</b>	<b>39</b>
2.1 Visualisation directe	40
2.2 L'imagerie ultrasonore : une technique échographique	40
2.2.1 Imagerie d'écoulement par ultrasons	41
2.2.2 Processus d'acquisition des speckles ultrasonore	43
2.2.3 Des données de speckle brut aux images ultrasonores	44
2.2.4 Champ de déplacement et vitesse axiale	48
2.2.5 Calibration du système	49
<b>II INSTABILITÉ ET TURBULENCE SOUS CISAILLEMENT</b>	<b>53</b>
<b>3 L'eau : un fluide pas si simple</b>	<b>55</b>
3.1 Mise en écoulement dans le régime laminaire	56
3.2 Instabilité linéaire de Taylor-Couette	57

3.2.1	Le viscosimètre de Couette-Mallock . . . . .	57
3.2.2	L'instabilité linéaire de Taylor dans le cas où le cylindre extérieur est fixe . . . . .	59
<b>4</b>	<b>Un fluide viscoélastique : les solutions de polymères</b>	<b>71</b>
4.1	Présentation . . . . .	72
4.2	Préparation de la solution de PAAM . . . . .	73
4.3	Rhéologie du PAAM . . . . .	74
4.3.1	Rhéologie linéaire et temps de relaxation viscoélastique . . . . .	74
4.3.2	Courbe d'écoulement et transition vers la turbulence élastique . . . . .	75
4.4	Imagerie d'écoulement du PAAM . . . . .	75
4.4.1	Visualisation directe . . . . .	75
4.4.2	Imagerie ultrasonore des diwhirls du PAAM . . . . .	76
4.4.3	Route vers la turbulence . . . . .	81
4.4.4	Vers une étude statistique de la turbulence . . . . .	85
<b>5</b>	<b>Un fluide viscoélastique plus complexe : les micelles géantes</b>	<b>89</b>
5.1	Présentation . . . . .	90
5.2	Régime semi-dilué . . . . .	93
5.2.1	Phénomène de bandes de cisaillement . . . . .	93
5.2.2	Rhéologie linéaire et non-linéaire . . . . .	97
5.2.3	Imagerie ultrasonore dans un système micellaire semi-dilué sous cisaillement . . . . .	98
5.3	Régime de concentration intermédiaire . . . . .	108
5.3.1	Une solution micellaire sans bande de cisaillement . . . . .	109
5.3.2	Route vers la turbulence inertio-élastique . . . . .	110
5.3.3	Étude de la bifurcation supercritique CF→SV . . . . .	112
5.3.4	Étude de la forme des « Standing Vortices » . . . . .	113
5.3.5	Vers une étude statistique de la turbulence inertio-élastique . . . . .	116
5.4	Régime dilué . . . . .	116
5.4.1	Rhéologie non-linéaire et shear-induced structures . . . . .	116
5.4.2	Dynamique spatio-temporelle de l'écoulement du CTAT . . . . .	119
5.4.3	Temps de nucléation . . . . .	121
5.4.4	Conclusion et diagramme de stabilité du CTAT . . . . .	123
<b>6</b>	<b>Bilan de la partie II et ouverture sur la turbulence élastique</b>	<b>125</b>
<b>III FLUIDIFICATION ET RUPTURE DE SOLIDES MOUS</b>		<b>127</b>
<b>7</b>	<b>Fluidification d'un gel de noir de carbone sous contrainte oscillante</b>	<b>129</b>
7.1	Présentation des fluides à seuil . . . . .	130
7.2	Présentation et propriétés du gel . . . . .	131
7.2.1	État de l'art . . . . .	131
7.2.2	Propriétés rhéologiques d'un gel de noir de carbone . . . . .	132
7.3	Matériel et méthodes pour une étude en LAOS-Stress . . . . .	135
7.3.1	Protocole utilisé . . . . .	135

7.3.2	Problèmes potentiels rencontrés en LAOS-Stress . . . . .	136
7.3.3	Analyse des données de LAOS-Stress . . . . .	137
7.4	Fluidification d'un gel de noir de carbone en LAOS-Stress . . . . .	141
7.4.1	Rampe en contrainte de cisaillement . . . . .	141
7.4.2	Expérience en contrainte oscillante d'amplitude constante . . . . .	142
7.4.3	Imagerie ultrasonore de la fluidification . . . . .	148
7.5	Scénario de mise en écoulement . . . . .	153
7.5.1	Mise en évidence de deux échelles de temps . . . . .	153
7.5.2	Comparaison entre les scénarii local et global . . . . .	154
7.6	Influence de la contrainte, de la fréquence et de la concentration. . . . .	155
7.6.1	Un scénario de fluidification qui dépend de $\sigma_0$ . . . . .	155
7.6.2	Vers une modélisation . . . . .	159
7.6.3	Apparition de forces normales lors de la coexistence fluide-solide . . . . .	162
7.6.4	Influence de la fréquence d'oscillation et de la concentration . . . . .	162
7.6.5	Sollicitation en contrainte oscillante : disparition du seuil en amplitude ? . . . . .	164
7.7	Bilan général du chapitre . . . . .	165
<b>8</b>	<b>Fluage et rupture irréversible d'un gel de protéines</b>	<b>167</b>
8.1	Introduction et présentation du gel . . . . .	168
8.1.1	État de l'art . . . . .	168
8.1.2	Microstructure et processus de gélification . . . . .	169
8.2	Matériel et méthodes . . . . .	171
8.2.1	Protocole pour la préparation du gel de caséine . . . . .	171
8.2.2	Rhéologie linéaire . . . . .	174
8.3	Un scénario de rupture robuste . . . . .	175
8.4	Loi de Basquin . . . . .	176
8.5	Définition des trois régimes de fluage . . . . .	177
8.5.1	Régime de fluage primaire et fluage d'Andrade . . . . .	177
8.5.2	Régime de fluage secondaire et relation de Monkman-Grant . . . . .	178
8.5.3	Régime de fluage tertiaire et croissance finale des fractures . . . . .	180
8.6	Comparaison avec le fluage du CB . . . . .	182
8.7	Résumé et discussion . . . . .	183
<b>9</b>	<b>Bilan de la partie III</b>	<b>185</b>
	<b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES</b>	<b>187</b>
<b>A</b>	<b>Critère de Rayleigh et entrefer effectif</b>	<b>193</b>
<b>B</b>	<b>Etude préliminaire d'une solution de HPAm</b>	<b>195</b>
B.1	Préparation de la solution . . . . .	195
B.2	Formation de diwhirls dans du HPAm . . . . .	195

<b>C</b>	<b>Bandes de cisaillement transitoires dans les fluides à seuil « simples »</b>	<b>197</b>
C.1	Le carbopol . . . . .	197
C.1.1	Motivations . . . . .	197
C.1.2	Préparation du microgel de carbopol . . . . .	198
C.1.3	Fluidification à taux de cisaillement imposé . . . . .	199
C.2	Les émulsions concentrées . . . . .	201
C.2.1	Préparation de l'émulsion . . . . .	201
C.2.2	Caractéristiques rhéologiques de l'émulsion . . . . .	201
C.2.3	Fluidification à taux de cisaillement imposé . . . . .	203
C.2.4	Fluidification à contrainte de cisaillement imposée . . . . .	205

# Introduction générale



La matière molle est un domaine de la physique consacré à l'étude des propriétés de fluides complexes. Proposée initialement par Madeleine Veyssié, cette expression a surtout été popularisée par Pierre Gilles de Gennes en 1991 lors de la réception du prix Nobel de physique pour l'ensemble de ses travaux sur les cristaux liquides et les polymères où il intitula son discours *soft matter* (matière molle en anglais) [de Gennes, 1992]. Par opposition aux fluides simples (aussi appelés fluides newtoniens) tels que l'eau, l'alcool ou encore l'huile, les fluides complexes possèdent une réponse particulière dès lors qu'on les sollicite et qu'on les met en écoulement. La maïzena, une farine de maïs utilisée pour la fabrication de gâteaux est un exemple assez parlant. En la mélangeant avec un peu de d'eau (2/3 de maïzena 1/3 d'eau en volume), on se rend compte très rapidement que le matériau n'offre pas la même résistance selon que l'on tourne la cuillère rapidement ou lentement. En effet la maïzena semble beaucoup plus visqueuse si l'on remue vite alors que pour de l'eau seule on n'observe pas de différence. Cette expérience montre que les propriétés de la maïzena changent avec la vitesse de l'écoulement. La maïzena n'est bien sûr pas un cas isolé et les exemples sont nombreux, citons entre autres le dentifrice, la mayonnaise, la mousse à raser, la peinture, le shampooing, la sauce vinaigrette, le béton, le pétrole, le sang ou encore les sables mouvants. Les propriétés complexes de ces fluides sont largement étudiées et les applications sont nombreuses dans les domaines agro-alimentaire, pharmaceutique, industriel, écologique ou encore cosmétique. Ainsi comprendre leurs propriétés mécaniques reste un enjeu essentiel pour les industriels. En tant que physiciens, notre approche est différente et restera beaucoup plus fondamentale.

Cette différence de comportement par rapport aux fluides simples, est due à l'existence d'une microstructure qui provient de l'arrangement particulier des éléments mésoscopiques constitutifs du matériau. On peut citer entre autres, les agrégats de particules de noir de carbone, les enchevêtrements de polymères ou encore les micelles de molécules tensioactives. Ainsi l'échelle de longueur caractéristique n'est plus l'échelle moléculaire des fluides simples mais une échelle mésoscopique intermédiaire entre l'échelle microscopique ( $\sim 10^{-10}$  m) et macroscopique ( $\sim 10^{-2}$  m). L'échelle mésoscopique balaie une vaste gamme de longueurs, généralement elle est comprise entre  $10^{-8}$  m et  $10^{-4}$  m. Cette taille représente par exemple la taille d'un agrégat dans une suspension colloïdale, le rayon de giration dans une solution de polymère diluée, la longueur d'une micelle cylindrique pour les solutions micellaires semi-diluées, ou encore le rayon d'une gouttelette d'huile dans une émulsion. Cette microstructure est à l'origine des propriétés hors-équilibre du fluide. En effet, en appliquant une contrainte ou un taux de cisaillement, de nouvelles réorganisations internes peuvent apparaître. Le cas des globules rouges qui en s'orientant suivant l'écoulement facilite le passage du sang dans les capillaires en est un exemple. On dit que le sang se fluidifie. Ce couplage microstructure-écoulement confère aux fluides complexes des comportements singuliers et peut engendrer des écoulements inhomogènes.

La rhéologie est l'étude de l'écoulement de la matière sous l'effet d'un cisaillement appliqué<sup>1</sup>. De nos jours, de nombreux rhéomètres existent et une des géométries couramment utilisée est la cellule de Taylor-Couette où l'échantillon est cisailé entre deux

---

1. On prend ici le terme cisaillement au sens large, il peut s'agir aussi bien d'une contrainte que d'un taux de cisaillement.



cylindres concentriques. Cependant, cet outil n'est pas adapté à l'étude des écoulements hétérogènes car elle ne donne qu'une description globale de l'écoulement et ne fournit que des grandeurs moyennées sur l'ensemble de la géométrie utilisée. Pour pallier à ce problème, des techniques locales ont été développées. En particulier, au cours de cette thèse une technique de vélocimétrie ultrasonore à deux dimensions a été mise en place. Grâce à cette technique échographique qui, de plus est synchronisée avec les mesures rhéologiques, nous pouvons résoudre à la fois spatialement et temporellement l'écoulement d'un fluide.

Visualiser localement l'écoulement d'un fluide complexe prend tout son sens lorsque celui-ci est hétérogène et que les mesures globales fournies par le rhéomètre ne suffisent pas à le décrire. Les exemples d'écoulements hétérogènes sont nombreux. Citons par exemple les instabilités de Taylor-Couette dans de l'eau, la formation de bandes de cisaillement dans des micelles géantes, la turbulence inertio-élastique dans des polymères, la fluidification de fluides à seuil comme les gels de noir de carbone ou encore la fracture d'un gel de protéine. Tous ces exemples montrent des coexistences entre différents états (ou différentes phases) et comprendre comment elles s'organisent et se structurent au sein de l'écoulement présente un intérêt fondamental. Ce manuscrit sera organisé comme suit :

- dans un premier temps nous exposerons quelques généralités sur les écoulements de fluides complexes et sur les techniques expérimentales qui permettent de les caractériser. Nous présenterons ainsi en détail la technique d'imagerie ultrasonore utilisée.
- dans une deuxième partie, nous nous intéresserons aux instabilités et à la turbulence sous cisaillement qui apparaissent dans trois types de systèmes : l'eau, les polymères et les micelles.
- la troisième partie sera consacrée à l'étude de fluides à seuil. La fluidification hétérogène de ces matériaux sera étudiée dans un premier temps sur des fluides à seuil simples tels que le carbopol ou des émulsions puis dans un second temps sur un gel de noir de carbone soumis à une contrainte oscillante de grande amplitude.
- enfin nous présenterons les résultats obtenus sur la rupture irréversible de gels de protéine.

# Première partie

## ÉTUDE D'UN FLUIDE COMPLEXE



# Chapitre 1

## Écoulements de fluides complexes

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Un exemple de fluide complexe : la « silly-putty »</b>	<b>20</b>
<b>1.2</b>	<b>Étude rhéologique d'un fluide complexe</b>	<b>21</b>
1.2.1	Principe de la rhéologie	21
1.2.2	Description d'un rhéomètre	23
1.2.3	La géométrie cône-plan	24
1.2.4	La cellule de Couette	24
1.2.5	Courbe d'écoulement : Rhéologie non linéaire	25
1.2.6	Thixotropie, rhéopexie et nombre de Deborah	27
1.2.7	Cisaillement oscillant : rhéologie linéaire	29
1.2.8	Effets élastiques, contraintes normales et viscosité élongationnelle	32
<b>1.3</b>	<b>Couplage microstructure-écoulement : écoulements hétérogènes</b>	<b>34</b>
1.3.1	Glissement aux parois	35
1.3.2	Bandes de cisaillement	35
1.3.3	Coexistence fluide-solide	36
1.3.4	Nécessité de mesures locales résolues en temps	36

---

## 1.1 Un exemple de fluide complexe : la « silly-putty »

De manière à fixer de suite les idées, considérons un fluide complexe assez démonstratif : la « silly-putty ». A première vue, cette pâte composée de polymères à base de silicone, ressemble en tout point à de la pâte à modeler. Elle est malléable, et garde la forme qu'on lui propose. On peut aussi bien en l'étirant former des fils qu'au contraire en la rassemblant modeler une boule. Cependant, cette pâte a un comportement très différent de celui de la pâte à modeler. Pour l'illustrer, la première expérience que nous pouvons faire est de lâcher une boule de « silly-putty » d'une hauteur  $h$  sans vitesse initiale comme l'illustre la figure 1.1(a). Le résultat est assez surprenant. Au lieu de s'écraser comme on pourrait s'y attendre avec de la pâte à modeler, la boule de « silly-putty » rebondit et remonte pratiquement à sa position initiale telle une balle de ping-pong. Cette pâte possède donc un module d'Young, encore appelé module élastique, et semble se comporter comme un solide élastique. La deuxième expérience illustrée sur la figure 1.1(b) consiste à placer cette boule sur un anneau et à regarder son évolution au cours du temps. Alors que la pâte à modeler garderait sa forme initiale indéfiniment, la « silly-putty » s'écoule comme le ferait un fluide visqueux tel que le miel. En effet la succession d'images montre la formation d'une goutte de silly putty qui s'allonge, s'amincit puis cède sous son poids au bout d'un temps  $t \simeq 43 \text{ min}^1$ . La mesure de la taille de la goutte au cours du temps représentée sur la figure 1.2 montre une évolution exponentielle aux temps intermédiaires. Ces mesures d'écoulement de fluide sous leur propre poids font partie d'un domaine de la rhéologie nommé rhéologie « extensionnelle » où la gravité joue le rôle d'une force appliquée et que nous ne développerons pas plus au cours de ce manuscrit. Toutefois, ces deux expériences montrent deux comportements limites de la « silly-putty » : aux temps courts, elle se comporte comme un solide élastique et aux temps longs celle-ci se comporte comme un fluide visqueux. Ce comportement particulier de la « silly-putty » qui change en fonction de la sollicitation fait d'elle un fluide complexe. Plus précisément, on dit que la « silly-putty » est un fluide viscoélastique.

Hormis la « silly-putty », de nombreux exemples d'écoulements de fluides complexes peuvent être observés, que ce soit dans la nature comme l'écoulement d'un glacier [Fig.1.3 (d)], ou en laboratoire comme l'expérience de la goutte de poix à Queensland, montrant la viscosité du bitume [Fig.1.3 (c)]. Ce dernier, qui d'apparence semble bien solide, est en réalité un fluide de très haute viscosité, près de 230 milliards de fois celle de l'eau, laissant ainsi tomber une goutte de bitume tous les 10 ans et ceci à température ambiante ! Ainsi comme l'a très bien illustré le peintre espagnol Salvador Dali dans ses célèbres montres molles [Fig.1.3 (a) et (b)], on pourrait alors se poser la question suivante : Solide ? Liquide ? Est-ce que cela ne serait pas une question de temps ? Est-ce que réellement tout s'écoule comme l'a énoncé Héraclite en -500 avant J.C. avec son célèbre « panta rhei » ? Afin d'essayer de répondre à cette question, nous allons maintenant définir les outils nécessaires à l'étude d'un fluide complexe.

---

1. On remarque ici que la goutte ne s'est pas entièrement détachée car celle-ci a touché le sol avant d'avoir pu s'amincir complètement.

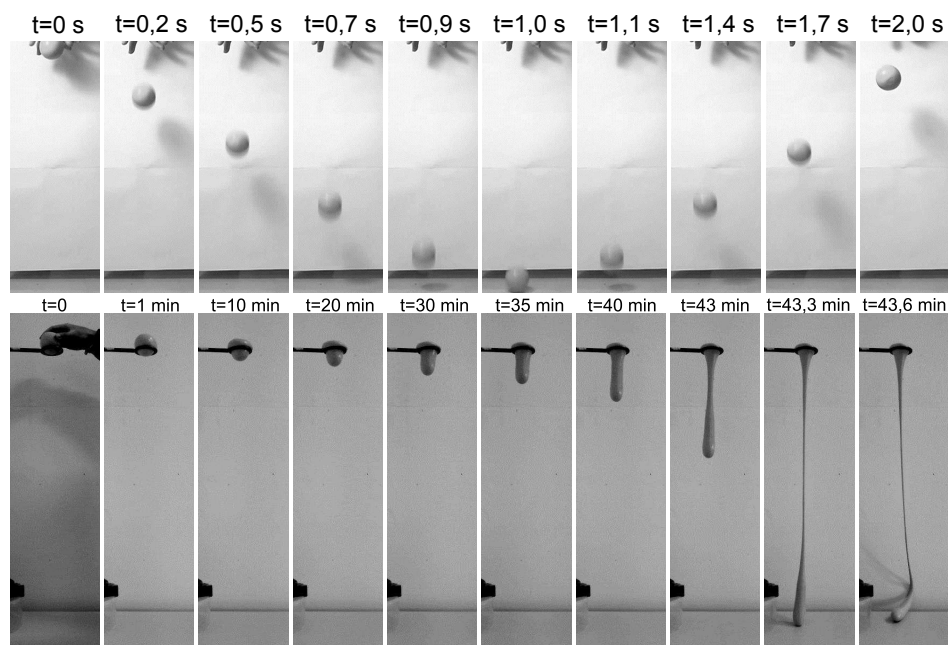


FIGURE 1.1 – **Comportement d'un fluide viscoélastique.** (a) Comportement élastique aux temps courts : rebond d'une boule de « silly-putty » lâchée d'une hauteur  $h$ . (b) Comportement visqueux aux temps longs : écoulement et formation d'une goutte de « silly-putty » (voir aussi la vidéo supplémentaire 1).

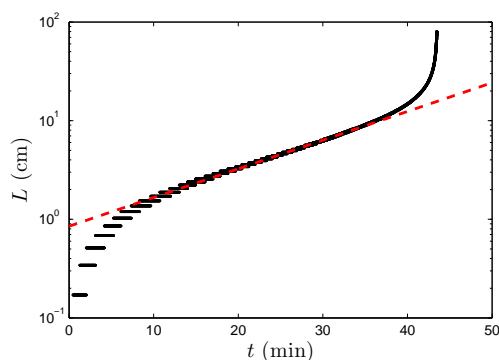


FIGURE 1.2 – **Rhéologie extensionnelle d'une boule de silly putty soumise à son propre poids.** Évolution temporelle de la longueur de la goutte de « silly-putty » de l'expérience Fig.1.1(b). Aux temps intermédiaires l'interpolation est donnée par :  $L(t) \sim 0,85 \exp(0,067t)$ .

## 1.2 Étude rhéologique d'un fluide complexe

### 1.2.1 Principe de la rhéologie

La rhéologie est l'étude de la déformation et de l'écoulement d'un matériau sous l'effet d'une contrainte ou d'un cisaillement appliqué. L'expérience de rhéologie basique consiste à confiner un échantillon entre deux plaques de surface  $S$ , séparées d'une distance  $d$  appelée entrefer (ou « gap » en anglais) et à appliquer une force  $F$ , ici

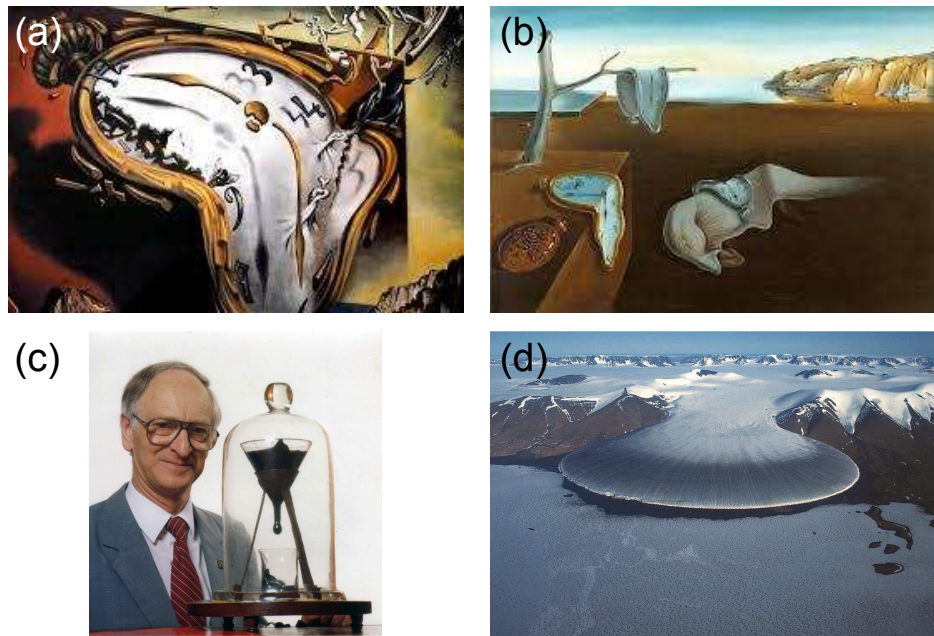


FIGURE 1.3 – Montres molles de Salvador Dali et écoulement de la matière. (a) Montre molle au moment de la première explosion (huile sur toile) 1954 Salvador Dali. (b) Persistance de la mémoire (huile sur toile) 1931 Salvador Dali. (c) Expérience de la goutte de poix à l’université du Queensland, à côté de son responsable de l’époque, le Pr John Mainstone (en 1990, deux ans après la chute de la 7e goutte). (d) Écoulement d’un glacier.

tangentielle, à la plaque supérieure (Fig.1.4). Cette géométrie de cisaillement est appelée « cisaillement simple ». La figure 1.4 montre le cas d’un cisaillement dans la direction  $x$  pendant une durée  $t$ . On note  $V$  la vitesse de la plaque supérieure et  $\delta$  son déplacement. A ce stade, nous pouvons définir trois grandeurs nécessaires pour la compréhension de ce manuscrit : la contrainte tangentielle (ou contrainte de cisaillement, « shear stress » en anglais)  $\sigma$  appliquée au matériau, le taux de cisaillement (« shear rate » en anglais)  $\dot{\gamma}$  et la déformation (« strain » en anglais)  $\gamma$ .

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad \dot{\gamma} = \frac{\partial v_x}{\partial y} = \frac{V}{d} \quad \gamma = \dot{\gamma}t = \frac{\delta}{d} \quad (1.1)$$

Comme nous l’avons décrit avec le cas de la « silly-putty », un fluide complexe peut avoir un comportement solide ou liquide suivant la vitesse à laquelle on le sollicite. Il est donc essentiel de bien définir ces cas limites.

- La relation qui régit le comportement d’un solide élastique est :  $\sigma = G_0\gamma$  où  $\sigma$  est la contrainte tangentielle appliquée,  $\gamma$  la déformation et  $G_0$  le module élastique caractéristique du solide étudié. La contrainte est donc ici proportionnelle à la déformation.
- Le comportement est différent dans le cas d’un liquide simple (appelé aussi fluide newtonien) où la contrainte est proportionnelle au taux de cisaillement :  $\sigma = \eta\dot{\gamma}$  où  $\eta$  est la viscosité du fluide.

La géométrie de cisaillement simple possède le désavantage d’être un système ouvert et de présenter une course de translation limitée. En réalité, le rhéologue privilégie plutôt

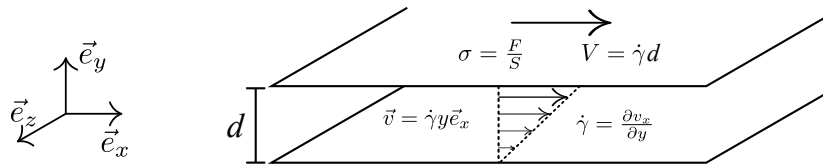


FIGURE 1.4 – Schéma d'un cisaillement simple entre deux plaques parallèles de surface  $S$  et écartées d'une distance  $d$ . La plaque supérieure est mise en mouvement à une vitesse  $V$  grâce à l'application d'une force  $\vec{F}$  tangentielle. La contrainte appliquée au matériau est alors  $\sigma = F/S$  et le taux de cisaillement subi par le fluide est  $\dot{\gamma} = V/d$ .

des géométries de rotation qui possèdent un axe de symétrie de révolution. Pour cela il utilise un outil, le rhéomètre rotatif que nous allons décrire à présent.

## 1.2.2 Description d'un rhéomètre

Pour caractériser les écoulements de fluides complexes, l'instrument du rhéologue est le *rhéomètre*. La géométrie rotative qui est la plus utilisée, est un appareil commercial composé d'un outil appelé *rotor* lié à l'axe de rotation du rhéomètre et d'une partie complémentaire appelée *stator* qui restera fixe dans notre cas. L'ensemble {stator+rotor} constitue la cellule de mesure du rhéomètre. Le fluide que l'on souhaite étudier est placé dans l'espace compris entre le rotor et le stator appelé *entrefer* (*gap* en anglais). La mise en rotation du rotor permet alors de cisailier le fluide et ainsi d'étudier sa réponse mécanique.

La figure 1.5 illustre les trois cellules de mesure (ou géométries) classiques pour un rhéomètre rotatif : la géométrie plan-plan, la géométrie cône-plan et la géométrie de Couette constituée de deux cylindres concentriques qui sera la plus utilisée dans cette étude et sur laquelle nous reviendrons en détails. Alors que dans le cas de l'expérience de cisaillement simple, l'outil était la plaque supérieure, ici les pièces mises en rotation sont successivement le plan supérieur, le cône et le cylindre intérieur. De plus il faut que l'entrefer (c'est-à-dire la distance entre le rotor et le stator) soit choisi petit devant les autres dimensions du système de manière à se rapprocher le plus possible du cisaillement simple.

A partir de la géométrie de la cellule, on peut convertir le couple en contrainte et la vitesse de rotation en taux de cisaillement. Nous illustrerons cette conversion sur la cellule de Taylor-Couette dans la partie suivante. De plus, de manière à ne mesurer que la contrainte appliquée à l'échantillon, il est nécessaire de soustraire la contribution due à l'inertie de la géométrie et de l'instrument ainsi que l'influence des frottements. Ces derniers sont largement limités dans les rhéomètres modernes grâce à un palier d'air comprimé qui soutient le moteur du rhéomètre. Il existe deux types de rhéomètres. On distingue les rhéomètres à cisaillement imposé où le moteur applique une vitesse de rotation  $\Omega$  constante, des rhéomètres à contrainte imposée où le moteur applique un couple  $\Gamma$  constant. Cependant, de manière à pouvoir imposer un cisaillement constant avec un rhéomètre à contrainte imposée, il est nécessaire de l'équiper d'une boucle de rétroaction de manière à corriger les variations de couple suivant la vitesse de rotation souhaitée.

Avant de décrire en détail la géométrie de Couette qui est celle que nous avons le



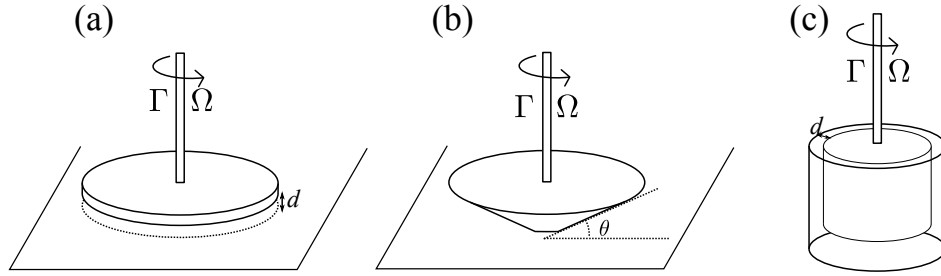


FIGURE 1.5 – **Géométries classiques pour un rhéomètre rotatif.** (a) géométrie plan-plan, (b) géométrie cône-plan et (c) géométrie de Couette. Le rhéomètre impose un couple  $\Gamma$  ou une vitesse de rotation  $\Omega$  à l'axe de rotation.

plus utilisée, nous allons présenter succinctement la géométrie cône-plan.

### 1.2.3 La géométrie cône-plan

La géométrie cône-plan, comme son nom l'indique, est constituée d'un cône et d'un plan. Selon les rhéomètres utilisés, ils peuvent être mis indépendamment en rotation mais dans notre cas seul le cône sera mobile, le plan restera fixe. Cette géométrie présente plusieurs avantages. Elle est facile d'utilisation surtout concernant le nettoyage ; le volume de liquide placé dans l'entrefer est faible ; du fait de sa faible inertie on a accès à de grandes valeurs de vitesse de rotation ; et de plus, le taux de cisaillement appliqué est constant sur l'entrefer excepté près du sommet tronqué du cône. Cependant, elle présente également plusieurs inconvénients. La présence d'une surface libre sur l'ensemble du périmètre du cône favorise l'évaporation ce qui limite le temps de manipulation à cause de la présence des ménisques en périphérie. Ce dispositif est également plus sensible au remplissage que pour une cellule de Taylor-Couette. Mais surtout, la visualisation locale d'écoulement est plus délicate que pour une cellule de Couette. Pour toutes ces raisons, la géométrie cône-plan a été principalement utilisée pour des mesures rhéologiques classiques de courbe d'écoulement, de rhéométrie oscillatoire mais également de mesure de contraintes normales sur lesquelles nous reviendrons dans le paragraphe 1.2.8.

Dans cette géométrie, la contrainte tangentielle globale  $\sigma$  appliquée à l'échantillon, le taux de cisaillement global  $\dot{\gamma}$  et la viscosité dynamique  $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$  s'écrivent en fonction du couple  $\Gamma$  et de la vitesse de rotation  $\Omega$  comme suit :

$$\sigma = \frac{3\Gamma}{2\pi R^3} \quad \dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\theta} \quad \eta = \frac{3\theta}{2\pi R^3} \frac{\Gamma}{\Omega} \quad (1.2)$$

### 1.2.4 La cellule de Couette

Indépendamment construite par Mallock [1888] et Couette [1888] dans le but de mesurer la viscosité de l'air et de l'eau, la cellule de Couette est constituée de deux cylindres concentriques de hauteur  $H$  et de rayons intérieurs  $R_i$  et extérieurs  $R_o = R_i + d$  où  $d$  désigne l'entrefer. Pour de petits entrefers tels que  $\Lambda = d/R_i \ll 1$ , et dans l'hypothèse de non glissement aux parois, il existe une solution analytique pour

l'écoulement stationnaire purement orthoradial ( $\vec{v} = v_\theta(r)\vec{e}_\theta$ ) obtenu avec un fluide simple, dit écoulement de base et souvent appelé « écoulement de Couette » :

$$v_\theta(r) = Ar + \frac{B}{r} \quad (1.3)$$

avec

$$A = -\frac{\Phi^2\Omega_i - \Omega_o}{1 - \Phi^2} \quad B = \frac{\Omega_i - \Omega_o}{1 - \Phi^2} R_i^2 \quad (1.4)$$

où  $\Omega_{i,o}$  représentent respectivement les vitesses de rotation du cylindre intérieur et extérieur, et  $\Phi = R_i/R_o$  est le rapport des rayons. Cette géométrie présentant les invariances par rotation autour de  $\theta$  et par translation selon  $z$ , la contrainte et le taux de cisaillement s'écrivent de la manière suivante :

$$\sigma(r) = \frac{\Gamma}{2\pi H r^2} \quad (1.5)$$

$$\dot{\gamma}(r) = -r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{v_\theta(r)}{r} \right) = \frac{2B}{r^2} \quad (1.6)$$

où  $\Gamma$  est le couple appliqué sur le cylindre intérieur. Dans le cas où seul le cylindre intérieur est en rotation, ce qui est le cas dans la plupart des expériences rhéométriques, on définit la contrainte de cisaillement globale et le taux de cisaillement global par :

$$\bar{\sigma} = \frac{R_i^2 + R_o^2}{4\pi H R_o^2 R_i^2} \Gamma \quad (1.7)$$

$$\bar{\dot{\gamma}} = \frac{R_i^2 + R_o^2}{R_o^2 - R_i^2} \Omega_i \quad (1.8)$$

En pratique les rhéomètres commerciaux calculent automatiquement ces mesures globales à partir des mesures du couple et de la vitesse de rotation. La viscosité du matériau est alors simplement donnée par  $\eta = \bar{\sigma}/\bar{\dot{\gamma}}$ . Si le fluide est newtonien, la loi rhéologique  $\bar{\sigma} = f(\bar{\dot{\gamma}})$  donnée par le rhéomètre et le comportement rhéologique local du fluide  $\sigma = f(\dot{\gamma})$  coïncident. Cependant si le fluide est non newtonien on peut s'attendre à un décalage notable entre les deux. La loi  $\bar{\sigma} = f(\bar{\dot{\gamma}})$  est appelée courbe d'écoulement et permet de caractériser le comportement global d'un fluide. Dans le paragraphe suivant, nous décrivons les courbes d'écoulement associées à quelques exemples de comportements non-newtoniens.

### 1.2.5 Courbe d'écoulement : Rhéologie non linéaire

Un fluide simple est un fluide dont la viscosité est constante, indépendante du temps et de la contrainte ou du taux de cisaillement imposé. Cela signifie que sa courbe d'écoulement est linéaire. On qualifie ces fluides de newtoniens. Ils suivent la loi :  $\sigma = \eta\dot{\gamma}$  (Fig.1.6, ligne b). C'est le cas notamment de fluides comme l'eau, l'huile, l'alcool mais aussi le mercure ou le miel qui ont des viscosités plus importantes. on note tout de même que la viscosité d'un fluide newtonien peut varier fortement avec la température.

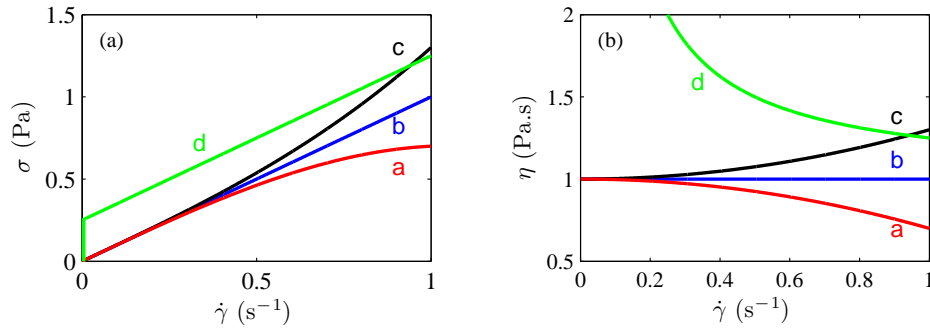


FIGURE 1.6 – Courbes d’écoulement pour différents types de fluides, a : fluide rhéo-fluidifiant, b : fluide newtonien, c : fluide rhéo-épaississant et d : fluide à seuil de Bingham suivant la loi :  $\sigma = \sigma_y + A\dot{\gamma}$ , avec  $\sigma_y = 0,1 \text{ Pa}$  et  $A = 1 \text{ Pa.s}$ . (a) Évolution de la contrainte  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et (b) de la viscosité  $\eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}}$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ .

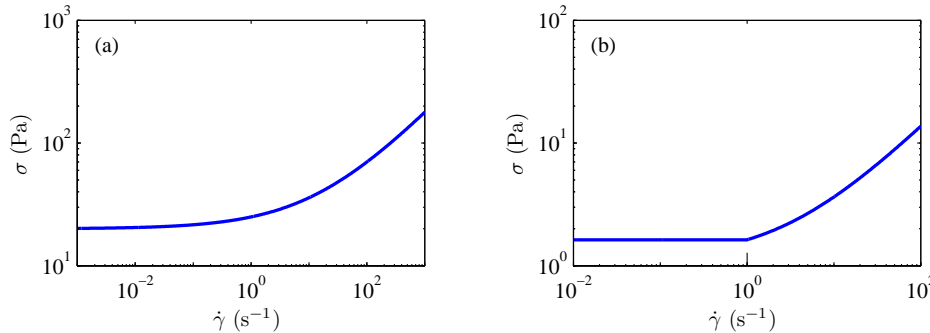


FIGURE 1.7 – Courbes d’écoulement typiques de fluides à seuil. (a) Fluide à seuil présentant une contrainte seuil  $\sigma_y$  et suivant la loi de Herschel-Bulkley :  $\sigma = \sigma_y + A\dot{\gamma}^n$ , avec  $\sigma_y = 20 \text{ Pa}$ ,  $A = 5 \text{ Pa.s}^n$  et  $n = 0,5$ . (b) Fluide à seuil présentant un taux de cisaillement seuil  $\dot{\gamma}_y = 1 \text{ s}^{-1}$  en-dessous duquel le fluide ne s’écoule pas :  $\sigma = \sigma_y$  avec ici  $\sigma_y = 1,63 \text{ Pa}$ , et au-dessus duquel le fluide suit la loi :  $\sigma = \sigma_y + A(\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_y)^n$ , avec  $A = 0,5 \text{ Pa.s}^n$  et  $n = 0,7$ .

Dans les fluides complexes, le couplage entre la microstructure du fluide et l’écoulement est à l’origine de la non-linéarité de l’équation rhéologique  $\sigma = f(\dot{\gamma})$ . On dit que ce sont des fluides non-newtoniens. La viscosité n’est donc pas constante et dépend du taux de cisaillement appliqué.

On distingue alors trois grands types de comportements :

- Le comportement *rhéo-épaississant* (Fig.1.6, ligne c) : la viscosité du fluide augmente avec le taux de cisaillement. On dit qu’il devient plus « épais ». C’est le cas par exemple de la maïzena précédemment citée ou encore des sables mouvants. Ce fluide, mélange concentré de petits grains de sable (quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  dans de l’eau) est un exemple assez parlant [Khaldoun et al., 2005]. Si l’on souhaite traverser un lit de sable mouvant, il vaut mieux courir que marcher doucement, car dans ce cas la viscosité du fluide sera plus grande car il sera cisailé fortement. Si, par malheur, on se retrouve pris au piège, s’agiter ne servirait à rien car plus on bouge vite plus la viscosité du fluide augmente. Le meilleur moyen de s’en sortir et de demander de l’aide à quelqu’un qui vienne nous tirer lentement avec

une force constante et sans à-coups.

- Le comportement *rhéo-fluidifiant* (Fig.1.6, ligne a) est le comportement inverse du cas rhéo-épaississant : la viscosité du fluide diminue avec le taux de cisaillement. Plus on cisaille le fluide, plus il s'écoule facilement. Les exemples ici sont plus nombreux. Citons entre autres les shampoings, des solutions de polymères, le ketchup ou encore un exemple bien connu : le sang. Cette propriété rhéo-fluidifiante du sang est nécessaire à la circulation sanguine notamment dans des vaisseaux de faible diamètre comme les capillaires sanguins où le taux de cisaillement est grand. L'origine microscopique de ce comportement réside dans la forme anisotrope des globules rouges qui composent en grande partie le sang. A faible taux de cisaillement, l'orientation des globules est aléatoire mais lorsque le cisaillement augmente les globules s'alignent dans le sens de l'écoulement facilitant ainsi la circulation du sang.
- Enfin, un dernier comportement fréquemment rencontré, est celui des fluides à seuil qui ne s'écoulent que lorsque la contrainte de cisaillement appliquée a dépassé une valeur critique nommée contrainte seuil. En dessous de ce seuil, bien qu'on applique une contrainte non nulle, le taux de cisaillement reste égal à zéro ce qui implique une viscosité infinie. Un exemple de fluide à seuil est le dentifrice. Pour faire sortir le dentifrice, il faut appuyer suffisamment sur le tube, sinon la pression est trop faible et celui ci ne s'écoule pas. Les gels à cheveux, la mayonnaise ou encore la mousse à raser sont aussi des fluides à seuil. De tels fluides peuvent ainsi supporter leur propre poids ou encore résister à l'écoulement lorsqu'on les dispose sur un plan incliné. De nombreuses lois ont été établies pour décrire les courbes d'écoulement d'un fluide à seuil. Citons par exemple la loi de Bingham [Fig.1.6, ligne d] :

$$\sigma = \sigma_y + \eta \dot{\gamma} \quad (1.9)$$

où  $\eta$  est la viscosité plastique, ou encore la loi d'Herschel-Bulkley [Fig.1.7(a)] :

$$\sigma = \sigma_y + A \dot{\gamma}^n \quad (1.10)$$

où  $\sigma_y$  est la contrainte seuil,  $A$  est l'indice de consistance en  $Pa.s^n$  et  $n$  l'indice d'écoulement ou de comportement.

Enfin, certains fluides comme la laponite étudiée par Gibaud et al. [2009], présentent également un seuil en taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_y$  [Fig.1.7(b)] et suivent une loi de type :

$$\begin{cases} \sigma = \sigma_y, & \text{pour } \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_y \\ \sigma = \sigma_y + A(\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_y)^n, & \text{pour } \dot{\gamma} > \dot{\gamma}_y \end{cases}$$

### 1.2.6 Thixotropie, rhéopexie et nombre de Deborah

Dans la Bible, livre des Juges, chapitre 5, verset 5, la prophétesse Deborah chanta après la victoire de Baraq sur Sisera le Philistin :

« Les montagnes s'écoulèrent devant le Seigneur ».

Comme l'a suggéré Reiner [1964], une interprétation possible de cette phrase serait que tout n'est qu'une question d'échelle de temps caractéristique et que tous les matériaux

même solides « coulent » si on les observe sur une durée suffisamment longue. On peut alors définir le nombre de Deborah  $De$  par la relation suivante :

$$De = \tau/t_{obs} \quad (1.11)$$

où  $\tau$  est le temps de relaxation caractéristique du fluide et  $t_{obs}$  et le temps d'observation ou autrement dit l'échelle de temps caractéristique de l'expérience. Le temps  $\tau$  est une propriété intrinsèque du fluide, cela peut être le temps de dissipation visqueuse pour un fluide newtonien ou encore le temps de relaxation viscoélastique pour une solution de micelles géantes. Ce nombre aura son importance, notamment lors de la résolution de mise en écoulement de solutions ou encore lors de sollicitation d'échantillons en cisaillement oscillant de grande amplitude.

Ainsi comme nous l'avons pressenti, le paramètre temps a une grande importance. Les notions de thixotropie et de rhéopexie (ou antithixotropie) en sont un exemple. Un fluide thixotrope (respectivement antithixotrope) est un fluide dont la viscosité diminue (respectivement augmente) avec le temps lorsqu'on lui applique une contrainte constante. Il faut bien faire la distinction entre thixotropie et rhéo-fluidification ainsi qu'entre antithixotropie et rhéo-épaississement. Un fluide thixotrope (respectivement antithixotrope) voit sa viscosité diminuer (respectivement augmenter) avec le temps de sollicitation mécanique tandis qu'un fluide rhéo-fluidifiant (respectivement rhéo-épaississant) voit sa viscosité diminuer (respectivement augmenter) avec la vitesse de sollicitation c'est-à-dire le taux de cisaillement. Les phénomènes de thixotropie sont en général d'origine structurelle. Les fluides antithixotropes sont rares, on peut citer par exemple la crème fouettée. Par contre les fluides thixotropes sont plus nombreux. Les gels colloïdaux, comme le gel de noir de carbone que nous décrirons en détail dans le chapitre 7, sont généralement des exemples de fluides thixotropes. Laissées au repos, les particules colloïdales s'agrègent pour former un réseau qui structure l'espace disponible, le gel a un aspect solide, tandis que lorsqu'on applique une contrainte constante suffisamment grande pour casser les liens entre les différents agrégats, le gel se fluidifie progressivement jusqu'à un état liquide. Si l'on arrête ensuite la sollicitation, la structure initiale se forme à nouveau et le gel retrouve ses propriétés initiales. Le phénomène est alors réversible. Le caractère thixotrope de certaines peintures est également exploité et il est possible d'ajuster le temps de restructuration en fonction des besoins. De telles peintures doivent pouvoir s'étaler facilement lorsqu'on applique le pinceau sur le mur, mais afin d'éviter les coulures avant le séchage elles doivent pouvoir se restructurer rapidement. Le plus souvent, on ajuste le temps de restructuration de ces peintures en ajoutant de fines particules d'argiles afin d'accélérer la cinétique [Boger et Walters, 1993].

Enfin, la thixotropie est à l'origine de cycles d'hystérésis dans la courbe d'écoulement. En appliquant une rampe montante puis descendante le chemin suivi par la courbe d'écoulement peut être différent. Les figures 1.8(a) et (b) illustre les courbes d'écoulement d'un microgel de carbopol et d'une suspension de laponite obtenus en diminuant puis en augmentant progressivement le taux de cisaillement. Cependant, la présence d'un cycle d'hystérésis n'implique pas forcément un état thixotrope. En effet alors que pour la suspension de laponite ou le gel colloïdal de noir de carbone, il peut être attribué à une modification structurelle, le carbopol est lui considéré comme non-thixotrope [Divoux et al., 2010]. Nous y reviendrons dans le chapitre C.

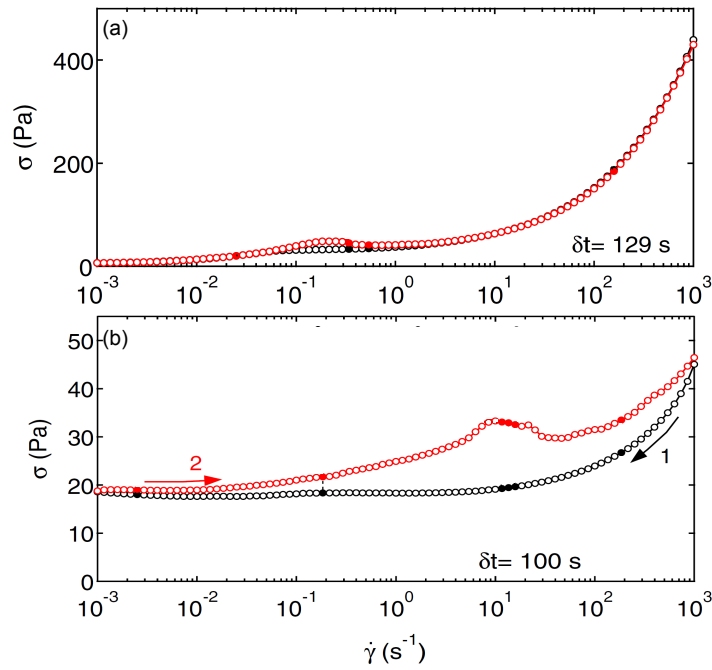


FIGURE 1.8 – Figure adaptée de [Divoux et al., 2013] illustrant le comportement hystérétique du carbopol, de la laponite et du gel de noir de carbone. (a) et (b) Courbes d'écoulement  $\sigma$  vs  $\dot{\gamma}$  obtenues en diminuant dans un premier temps  $\dot{\gamma}$  de  $10^3$  à  $10^{-3}$   $\text{s}^{-1}$  en 90 paliers espacés logarithmiquement et d'une durée  $\delta t$  ( $\circ$ ) puis en augmentant  $\dot{\gamma}$  sur la même gamme ( $\bullet$ ) pour (a) un microgel de carbopol de concentration 1% en masse et (b) une suspension de laponite de concentration 3% en masse.

### 1.2.7 Cisaillement oscillant : rhéologie linéaire

L'étude de la courbe d'écoulement est utile lorsqu'on souhaite connaître le comportement à grande déformation d'un fluide. Cependant, elle ne nous permet pas vraiment de sonder ses propriétés élastiques. Pour cela, il est nécessaire de se limiter à de faibles déformations et le meilleur moyen de connaître le module élastique d'un fluide et son temps de relaxation viscoélastique est d'utiliser la rhéométrie oscillatoire. On applique ainsi une déformation sinusoïdale (ou une contrainte) de faible amplitude et on observe la réponse en contrainte (ou en déformation). Pour une amplitude de déformation  $\gamma_0$  faible, on peut linéariser les équations et ainsi la réponse est elle aussi sinusoïdale. On pose alors :

$$\gamma(t) = \gamma_0 \cos(\omega t) \quad (1.12)$$

$$\sigma(t) = \sigma_0 \cos(\omega t + \delta) \quad (1.13)$$

où  $\gamma_0$  et  $\sigma_0$  sont respectivement les amplitudes de la déformation et de la contrainte tandis que  $\delta$  est le déphasage entre le signal de déformation et celui de la contrainte. En passant en notation complexe, la déformation et la contrainte s'écrivent :

$$\gamma^*(t) = \gamma_0 \exp(i\omega t) \quad (1.14)$$

$$\sigma^*(t) = \sigma_0 \exp[i(\omega t + \delta)] \quad (1.15)$$

On définit alors le module complexe  $G^*$  tel que :  $\sigma^*(t) = G^*\gamma^*(t)$ , ainsi que  $G'$  et  $G''$  tels que :

$$G^* = G' + iG'' = \frac{\sigma_0}{\gamma_0} \exp(i\delta) \quad (1.16)$$

où  $G' = \frac{\sigma_0}{\gamma_0} \cos \delta$  et  $G'' = \frac{\sigma_0}{\gamma_0} \sin \delta$  sont respectivement les parties réelle et imaginaire de  $G^*$ .

Le module  $G^*$  se calcule facilement dans les deux cas limites suivants :

- Pour un solide élastique, nous avons vu que  $\sigma = G_0\gamma$ . Ainsi dans ce cas limite,  $G^* = \sigma^*/\gamma^* = G_0$  et par conséquent  $G' = G_0$  (et  $G'' = 0$ ), d'où son appellation de *module élastique ou module de stockage*.
- A l'inverse, dans le cas d'un fluide purement visqueux, nous avons vu que  $\sigma = \eta\dot{\gamma}$  soit  $G^* = \sigma^*/\gamma^* = \eta\dot{\gamma}^*/\gamma^* = i\omega\eta$  et par conséquent  $G'' = \omega\eta$  (et  $G' = 0$ ), d'où son appellation de *module visqueux ou module de perte*.

Pour un matériau quelconque, on peut alors mesurer les modules  $G'$  et  $G''$  afin de savoir s'il se comporte plutôt comme un solide ( $G' > G''$ ) ou plutôt comme un liquide ( $G'' > G'$ ). Nous verrons que cette inégalité peut dépendre d'une part de l'amplitude de la déformation oscillante appliquée (cas du gel de noir de carbone du chapitre 7) mais également de la fréquence à laquelle on le sollicite (cas des micelles géantes) voire même du temps. Dès lors que les modules  $G'$  et  $G''$  sont tous les deux non nuls, le fluide est considéré comme *viscoélastique*. Ce phénomène de viscoélasticité a été déjà mis en évidence avec l'exemple de la « silly-putty ». Une solution de molécules tensioactives est également un système viscoélastique. Elle est décrite par le modèle de Maxwell que nous allons présenter maintenant.

### Le modèle de Maxwell

Un fluide de Maxwell est constitué de l'association en série d'un ressort de module élastique (raideur)  $G_0$  représentant le solide élastique et d'un amortisseur de coefficient de viscosité  $\eta$  représentant le fluide newtonien. Dans cette configuration, quand on applique une contrainte axiale, la contrainte totale  $\sigma_{tot}$  et la déformation totale  $\gamma_{tot}$  s'écrivent de la manière suivante :

$$\sigma_{tot} = \sigma_A = \sigma_R = \sigma \quad (1.17)$$

$$\gamma_{tot} = \gamma_A + \gamma_R \quad (1.18)$$

où les contraintes de l'amortisseur A et du ressort R sont respectivement données par :  $\sigma_A = \eta\dot{\gamma}_A$  et  $\sigma_R = G_0\gamma_R$ . En dérivant la déformation totale par rapport au temps on obtient :

$$\frac{d\gamma_{tot}}{dt} = \dot{\gamma} = \frac{d\gamma_A}{dt} + \frac{d\gamma_R}{dt} = \frac{\sigma}{\eta} + \frac{1}{G_0} \frac{d\sigma}{dt} \quad (1.19)$$

En multipliant cette équation par  $\eta$  et en faisant apparaître le temps de relaxation de Maxwell :  $\tau_m = \frac{\eta}{G_0}$ , on aboutit à l'équation différentielle suivante :

$$\tau_m \dot{\sigma} + \sigma = \eta\dot{\gamma} \quad (1.20)$$

La solution générale de cette équation s'écrit :

$$\sigma(t) = \frac{\eta}{\tau_m} \int_{-\infty}^t \exp[-(t-t')/\tau_m] \dot{\gamma}(t') dt' \quad (1.21)$$

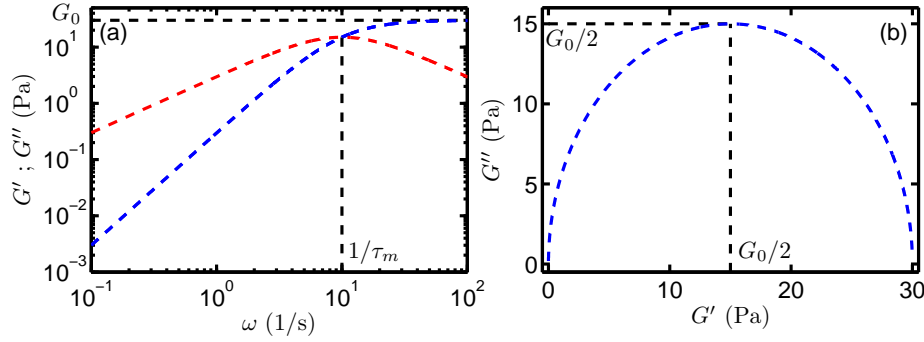


FIGURE 1.9 – **Modèle de Maxwell pour un fluide viscoélastique.** (a) Évolution du module élastique  $G'$  (en bleu) et du module visqueux  $G''$  (en rouge) avec la fréquence. Aux basses fréquences, le comportement du fluide est liquide ( $G' < G''$ ) mais à haute fréquence le fluide présente un comportement élastique ( $G' > G''$ ). (b) Représentation de Cole-Cole :  $G''$  en fonction de  $G'$  formant le demi-cercle de l'équation 1.24. Ici  $\tau_m = 0,1$  s et  $G_0 = 30$  Pa.

En passant en notation complexe, l'équation 1.20 se met sous la forme :

$$\sigma^* = \frac{\eta i \omega}{1 + i \omega \tau_m} \gamma^* = \frac{G_0 i \omega \tau_m}{1 + i \omega \tau_m} \gamma^* \quad (1.22)$$

Le module  $G^*$  dans le cadre de ce modèle vaut alors  $G^* = \sigma^*/\gamma^* = G' + iG''$  avec :

$$G' = \frac{G_0 \omega^2 \tau_m^2}{1 + \omega^2 \tau_m^2} \quad G'' = \frac{G_0 \omega \tau_m}{1 + \omega^2 \tau_m^2} \quad (1.23)$$

La figure 1.9(a) représente l'évolution de  $G'$  et  $G''$  en fonction de la pulsation  $\omega$ . Leur intersection permet alors de déterminer le temps de relaxation viscoélastique de Maxwell  $\tau_m$ . On remarque alors que :

$$\left(G' - \frac{G_0}{2}\right)^2 + G''^2 = \frac{G_0^2}{4} \quad (1.24)$$

est l'équation d'un cercle. Ainsi la représentation de  $G''$  en fonction de  $G'$ , dite de Cole-Cole est un demi-cercle de centre  $G_0/2$  et de rayon  $G_0/2$  [Fig.1.9(b)].

Notons que suivant le mode de sollicitation utilisé, on ne sonde pas les mêmes propriétés du fluide étudié. Ainsi un fluide complexe tel que les micelles géantes (mélange de tensioactifs et de sel que nous décrirons en détail dans le chapitre 5) peut être viscoélastique et rhéo-fluidifiant. La viscoélasticité est mesurable à des faibles déformations c'est-à-dire en rhéologie linéaire et cisaillement oscillant, tandis que la rhéo-fluidification est observable à des grandes déformations à travers la courbe d'écoulement en régime non-linéaire.

Comme nous le verrons dans le chapitre 5, les systèmes micellaires peuvent développer des instabilités élastiques dont l'origine réside dans l'existence de contraintes normales. Avant de nous plonger dans l'étude de ces instabilités dans une cellule de Taylor-Couette, nous allons dans un premier temps donner un aperçu des différents effets élastiques observés dans le cas d'expériences simples et définir plus en détail la direction des contraintes normales dans les différentes géométries utilisées.



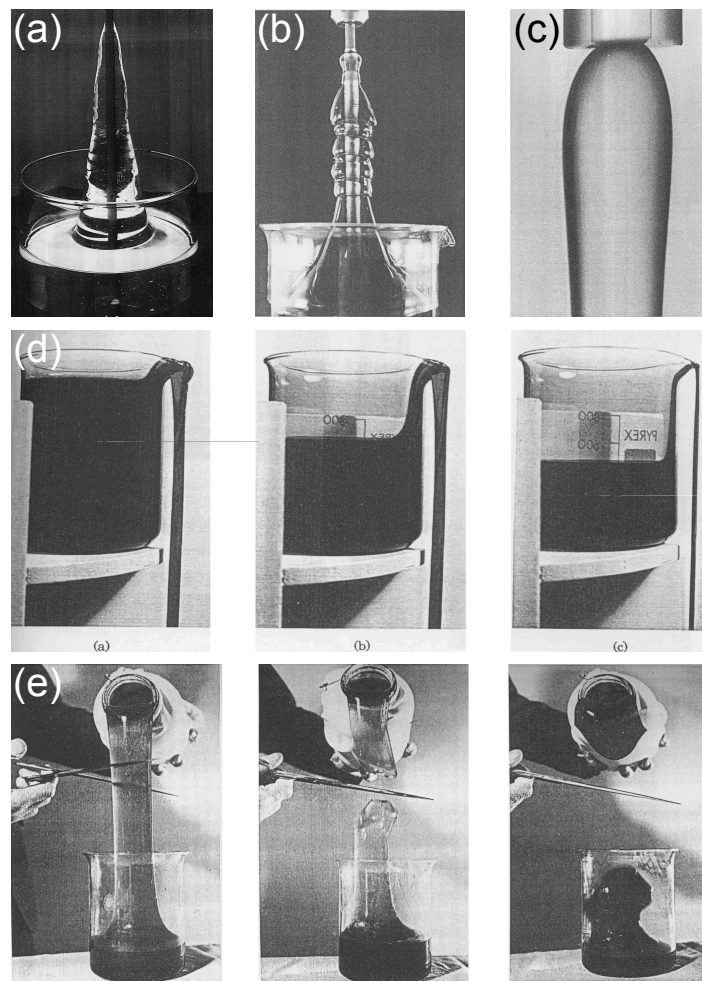


FIGURE 1.10 – Diverses expériences montrant les effets élastiques de certains fluides. (a) et (b) Effet Weissenberg - montée d'une solution de polymère le long d'une tige en rotation, (c) Gonflement à l'extrusion d'un tube pour une solution aqueuse de 2% de polyacrylamide, (d) Siphon ouvert réalisé avec une solution aqueuse de 0,75% d'oxyde de polyéthylène (Polyox WSR 301) : la séquence montre le développement du siphon à partir d'un versement initial hors du béccher et (e) Détente élastique : la séquence montre ici la remontée d'un fluide élastique dans le béccher après qu'on l'ait coupé avec des ciseaux. Photographies tirées de [Boger et Walters, 1993]

### 1.2.8 Effets élastiques, contraintes normales et viscosité élongationnelle

Depuis près d'un demi-siècle, de nombreuses instabilités à nombre de Reynolds « nul » ont été observées dans les fluides complexes<sup>2</sup>. Ainsi la montée d'une solution de polymère le long d'une tige en rotation, nommée effet Weissenberg ou « rod-climbing » en anglais dont la première explication détaillée remonte à 1947 [Weissenberg, 1947] [voir Fig.1.10(a) et (b)] ou encore le gonflement d'un fluide complexe lors de son extrusion [Tanner, 1970] [voir Fig.1.10(c)], peuvent être attribués à l'existence

2. A noter ici que nous prenons le terme d'instabilité au sens large. En particulier, l'existence d'un seuil d'instabilité n'est pas nécessairement avérée pour les phénomènes cités ci-dessus.

Géométrie	Schéma	Coordonnées			Contraintes				$N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22}$
		$x_1$	$x_2$	$x_3$	$\sigma_{11}$	$\sigma_{22}$	$\sigma_{33}$	$\sigma_{21}$	
Cisaillement simple Couette plan		$x$	$y$	$z$	$\sigma_{yy}$	$\sigma_{xx}$	$\sigma_{zz}$	$\sigma_{yx}$	$N_1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$
Cellule de Couette Cylindres concentriques		$\theta$	$r$	$z$	$\sigma_{zz}$	$\sigma_{rr}$	$\sigma_{\theta\theta}$	$\sigma_{\theta r}$	$N_1 = \sigma_{\theta\theta} - \sigma_{rr}$
Cône-plan		$\phi$	$\theta$	$r$	$\sigma_{\theta\theta}$	$\sigma_{rr}$	$\sigma_{\phi\phi}$	$\sigma_{\theta\phi}$	$N_1 = \sigma_{\phi\phi} - \sigma_{\theta\theta}$
Plan-plan		$\theta$	$z$	$r$	$\sigma_{zz}$	$\sigma_{rr}$	$\sigma_{\theta\theta}$	$\sigma_{\theta z}$	$N_1 = \sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz}$

FIGURE 1.11 – Tableau récapitulatif des différentes géométries utilisées pour cisailer un fluide. La première colonne indique le nom de la géométrie. La deuxième colonne la schématise. La troisième colonne indique les directions  $x_1$  de l'écoulement ( $\vec{v}$ ),  $x_2$  du gradient de vitesse ( $\vec{\nabla}\vec{v}$ ) et  $x_3$  de la vorticité  $\vec{\nabla} \wedge \vec{v}$ , la quatrième colonne représente sur une particule fluide les contraintes normales  $\sigma_{11}$ ,  $\sigma_{22}$  et  $\sigma_{33}$  ainsi que la contrainte de cisaillement  $\sigma_{21}$ . Enfin on note, dans la cinquième colonne, la première différence de contrainte normale  $N_1$ .

de *forces normales* qui s'exercent perpendiculairement à la direction de la vitesse. L'expérience du *siphon ouvert* qui permet de siphonner un fluide viscoélastique sans utiliser de tuyau voir [Fig.1.10(d)] ou encore l'expérience de *détente élastique* [voir Fig.1.10(e)] sont attribuées à l'existence d'une forte *viscosité élongationnelle* (viscosité mesurée lorsqu'une contrainte élongationnelle est appliquée au fluide). Alors que l'inertie est à l'origine de nombreuses instabilités dans des fluides newtoniens où le nombre de Reynolds prédomine, ce sont les contraintes normales qui génèrent les instabilités élastiques dans des fluides viscoélastiques. Il est donc nécessaire de bien définir la direction des contraintes normales dans les différentes géométries utilisées par le rhéologue.

Dans chacune des géométries, on peut définir trois directions :

- $x_1$  est la direction de l'écoulement :  $\vec{v}$ ,
- $x_2$  est la direction du gradient de vitesse (c'est-à-dire du taux de cisaillement) :  $\vec{\nabla}\vec{v}$ ,
- et  $x_3$  est la direction de la vorticité :  $\vec{\omega} = \text{rot}\vec{v} = \vec{\nabla} \wedge \vec{v}$  encore appelée direction neutre.

La contrainte de cisaillement est par définition la composante  $\sigma_{21}$  du tenseur des

contraintes  $\bar{\sigma}$  tandis que les contraintes normales sont les composantes  $\sigma_{11}$ ,  $\sigma_{22}$  et  $\sigma_{33}$ . On désigne la première différence de contraintes normales par la quantité suivante :

$$N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22} \quad (1.25)$$

Alors que pour un fluide newtonien les contraintes normales restent isotropes, dans un fluide élastique, tel une solution de polymère, l'écoulement de cisaillement modifie la microstructure du fluide et la rend anisotrope. Ceci induit des différences entre contraintes normales non nulles. L'anisotropie des contraintes normales est un effet non-linéaire : à faible taux de cisaillement  $N_1$  est une fonction quadratique de  $\dot{\gamma}$ . Pour refléter ce caractère non linéaire, on définit un coefficient d'anisotropie  $\Psi_1$  tel que :

$$N_1 = -\Psi_1 \dot{\gamma}^2 \quad (1.26)$$

En général  $N_1$  est négatif et beaucoup plus grand en valeur absolue que la deuxième différence de contraintes normales  $N_2 = \sigma_{22} - \sigma_{33} = -\Psi_2 \dot{\gamma}^2$  qui est généralement positive et que nous ne développerons pas plus ici. Pour essayer de comprendre cela revenons à l'effet Weissenberg où le fluide remonte le long de l'axe en rotation. Dans l'écoulement engendré par le cylindre tournant, la vitesse est essentiellement azimutale dirigée selon  $\theta$  avec un gradient de vitesse selon  $r$ . L'anisotropie des contraintes normales est telle que :  $\sigma_{\theta\theta} < \sigma_{rr}$  et  $N_1$  est ici négatif. Il existe donc une « tension » le long des lignes de courant circulaires (soit une force centripète) qui tend à pousser le fluide vers le centre de rotation et donc à le faire monter le long du cylindre. Nous verrons dans l'étude de solutions de micelles géantes que ces contraintes normales sont à l'origine d'instabilités élastiques au sein de l'écoulement. Ceci se manifeste en géométrie de Couette, par l'apparition de rouleaux contra-rotatifs.

Dans une géométrie cône-plan,  $N_1$  est à l'origine d'une *force normale* :  $\vec{F}_z = F_z \vec{e}_z$  qui s'applique sur le cône. La mesure de  $F_z$  permet alors de remonter à  $N_1$  par la relation :

$$N_1 = \frac{2}{\pi R^2} F_z \quad (1.27)$$

Le tableau de la figure 1.11 récapitule toutes les grandeurs définies ci-dessus selon la géométrie de cisaillement utilisée<sup>3</sup>.

### 1.3 Couplage microstructure-écoulement : écoulements hétérogènes

Comme nous l'avons dit précédemment, les fluides complexes comme les émulsions, les gels colloïdaux, les solutions de polymères ou encore de molécules tensioactives possèdent une « microstructure », c'est-à-dire une organisation supramoléculaire, susceptible de se modifier sous l'effet d'un écoulement, à des échelles de temps facilement accessibles à l'expérience. Ce couplage entre microstructure et écoulement conduit fréquemment à des instabilités donnant lieu à des écoulements hétérogènes. Nous allons à présent décrire trois types d'hétérogénéités différentes : le glissement aux parois, le phénomène de bande de cisaillement et la coexistence fluide-solide.

3. Notons ici que pour une facilité de représentation, dans la cellule de Couette c'est le cylindre extérieur qui tourne et que dans la géométrie plan-plan c'est le plan inférieur qui tourne.

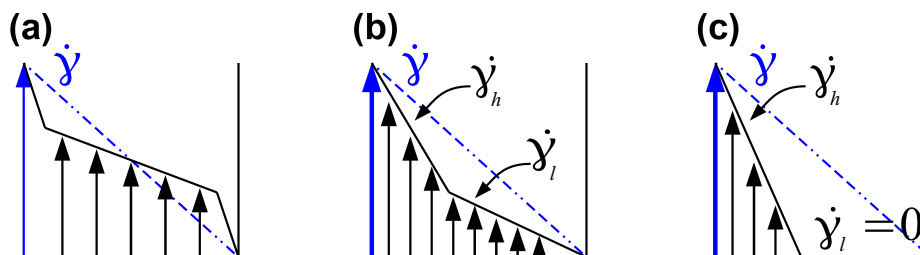


FIGURE 1.12 – **Exemples d'écoulements hétérogènes.** (a) Écoulement présentant un glissement aux parois : le profil de vitesse est scindé en trois parties correspondant à trois taux de cisaillement différents. (b) Écoulement en bandes de cisaillement caractéristique de solutions de micelles géantes. Le fluide présente alors deux bandes cisillées à deux taux de cisaillement locaux distincts  $\dot{\gamma}_l$  et  $\dot{\gamma}_h$ . (c) Écoulement caractéristique d'une coexistence liquide-solide d'un fluide à seuil. Une région du fluide est non-cisillée ( $\dot{\gamma}_l = 0$ ) tandis que la partie proche du rotor est en mouvement à  $\dot{\gamma}_h$ . Le taux de cisaillement local est défini ici comme la « pente » du profil de vitesse. Les pointillés bleus indiquent le cas d'un fluide newtonien.

### 1.3.1 Glissement aux parois

Lorsque l'extrapolation du profil de vitesse mesuré dans l'échantillon ne coïncide pas avec la vitesse de la paroi (fixe ou en rotation) [Fig.1.12(a)], on parle de glissement aux parois. Ce phénomène est généralement interprété par la présence d'une fine couche de lubrification de viscosité très faible devant celle de l'échantillon et de taille très inférieure à celle de l'entrefer. Cette couche est soumise à un taux de cisaillement très important de manière à raccorder le profil de vitesse en volume à la vitesse de la paroi. Ce glissement est plus ou moins important suivant les systèmes utilisés et les conditions de rugosité des parois (rotor, stator). Nous verrons que le glissement aux parois est un phénomène courant dans l'écoulement de fluides complexes et plus particulièrement dans les micelles géantes.

### 1.3.2 Bandes de cisaillement

Au-delà du glissement à la paroi, sous certaines conditions, l'hétérogénéité de l'écoulement peut se présenter sous la forme de bandes de cisaillement [voir Fig.1.12(b) et Fig.1.13(a)]. Ces bandes correspondent à des régions cisillées à des taux de cisaillement locaux différents  $\dot{\gamma}_l$  et  $\dot{\gamma}_h$  ce qui se traduit sur le profil de vitesse par deux pentes locales distinctes dans la direction du gradient de vitesse. Ces bandes de cisaillement peuvent s'interpréter de plusieurs manières suivant les fluides étudiés. On parle alors de :

- un couplage entre l'écoulement et le champ de concentration [Besseling et al., 2010; Fall et al., 2010] : l'écoulement peut induire une migration des particules et conduire à une hétérogénéité spatiale des propriétés du matériau (viscosité locale par exemple). La région proche du rotor, plus fluide, est donc cisillée avec un plus grand taux de cisaillement que la région proche du stator, plus concentrée et donc plus visqueuse.
- un couplage entre l'écoulement et la structure microscopique du fluide : c'est le cas des micelles géantes qui peuvent s'aligner localement en un état nématique

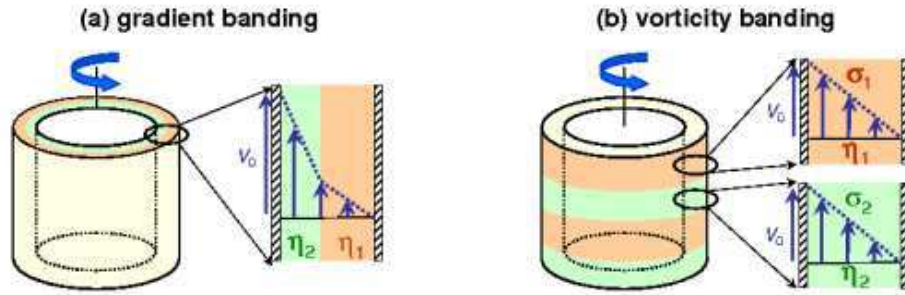


FIGURE 1.13 – **Phénomène de bandes de cisaillement.** (a) Bandes de cisaillement dans la direction du gradient de vitesse : coexistence de régions cisillées à des taux de cisaillement différents. (b) Bandes de cisaillement dans la direction de la vortacité : coexistence de régions cisillées à des contraintes de cisaillement différentes. Figure issue de Manneville [2008].

fluide proche du rotor et coexister avec une région isotrope visqueuse proche du stator [Berret, 2005].

Lorsqu'on visualise des bandes de cisaillement dans la direction du gradient de vitesse (selon  $r$  pour une cellule de Couette), on parle de « gradient banding ». On peut également parler de bandes de cisaillement lorsque des régions macroscopiques cisillées à des contraintes de cisaillement locales différentes dans la direction de la vortacité (selon  $z$  pour une cellule de Couette) coexistent. On parle alors de « vorticity banding » [voir Fig.1.13(b)].

### 1.3.3 Coexistence fluide-solide

La coexistence fluide-solide peut s'observer dans certains fluides à seuil qui ne parviennent pas à s'écouler en dessous d'un taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ . En imposant un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$ , l'écoulement se divise en deux régions : une région non cisillée qui reste immobile à  $\dot{\gamma}_l = 0$  et une autre cisillée à  $\dot{\gamma}_h = \dot{\gamma}_c$  de manière à ce que le cisaillement moyen soit égal à  $\dot{\gamma}$  [Fig.1.12(c)]. Cette transition liquide-solide peut être vue comme le cas limite du scénario de bandes de cisaillement dans la direction du gradient de vitesse lorsque  $\dot{\gamma}_l \rightarrow 0$ . Nous y reviendrons en détail dans le chapitre 5.

### 1.3.4 Nécessité de mesures locales résolues en temps

Grâce aux exemples précédents d'écoulements hétérogènes, nous avons ainsi pu remarquer que le taux de cisaillement global (ou la contrainte globale) appliqué par le rhéomètre déduit de sa vitesse de rotation ne coïncide pas nécessairement avec le taux de cisaillement local (ou la contrainte locale) réellement appliqué dans l'échantillon. Une mesure locale du champ de vitesse aussi bien dans la direction du gradient de vitesse ( $r$ ) que de la vortacité ( $z$ ) est donc nécessaire.

De plus, dans le but de visualiser la dynamique de l'écoulement (mise en place d'instabilités, développement de la turbulence), une bonne résolution temporelle est également nécessaire. Résoudre le démarrage d'un écoulement, la transition d'un écoulement laminaire vers une instabilité ou encore les fluctuations spatiales et temporelles

du champ de vitesse lorsqu'on atteint la turbulence fait partie des informations importantes à connaître pour caractériser le fluide complexe étudié.

Dans le but d'obtenir simultanément des informations locales sur la microstructure du fluide ainsi que sur son écoulement, de nombreuses techniques de visualisation et de mesures locales, couplées aux mesures rhéologiques, ont été développées au cours de ces vingt dernières années. Sébastien Manneville a récemment résumé ces différentes techniques dans la revue [Manneville, 2008]. La caractérisation locale de la structure du fluide peut être déduite à partir de diffusion de lumière [Kadoma et van Egmond, 1996], de neutron [Liberatore et al., 2006] ou de rayon-X [Welch et al., 2002] ou à partir de mesures de biréfringence [Cappelaere et al., 1997a; Lerouge et al., 2004]. Les mesures locale de vitesses sont elles obtenues grâce à la vélocimétrie par résonance magnétique nucléaire [Callaghan, 2008], à la vélocimétrie par corrélation d'images ou par suivi de particules [Hu et Lips, 2005; Boukany et al., 2010], ou encore par vélocimétrie ultrasonore [Manneville et al., 2004]. C'est cette dernière méthode qui a été utilisée au cours de cette thèse et que nous allons maintenant développer.



# Chapitre 2

## Techniques d'imagerie

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Visualisation directe . . . . .</b>	<b>40</b>
<b>2.2</b>	<b>L'imagerie ultrasonore : une technique échographique . .</b>	<b>40</b>
2.2.1	Imagerie d'écoulement par ultrasons . . . . .	41
2.2.2	Processus d'acquisition des speckles ultrasonore . . . . .	43
2.2.3	Des données de speckle brut aux images ultrasonores . . . . .	44
2.2.4	Champ de déplacement et vitesse axiale . . . . .	48
2.2.5	Calibration du système . . . . .	49

---



Au cours de cette thèse, nous avons utilisé deux techniques de visualisation des écoulements. La première est purement qualitative et consiste à imager l'écoulement à l'aide de paillettes réfléchissantes et d'une webcam standard. Nous la nommerons « visualisation directe ». La deuxième technique est beaucoup plus quantitative. Il s'agit de la technique d'imagerie ultrasonore que nous décrirons en détail dans un second temps.

## 2.1 Visualisation directe

Pour visualiser de manière directe les écoulements dans la cellule de Taylor-Couette, l'ajout de paillettes ou d'un colorant ainsi qu'une source de lumière adaptée est nécessaire. Taylor, lors de ses premières expériences [Taylor, 1923a], avait utilisé de l'encre qu'il injectait à partir du rotor à différentes hauteurs pour visualiser l'apparition de rouleaux contra-rotatifs caractéristiques de la première instabilité inertielle de Taylor-Couette observable dans un fluide newtonien. Le problème de cette technique est qu'en milieu fermé, l'échantillon devient rapidement entièrement pollué par le colorant et engendre une perte de contraste dans les enregistrements. Nous avons donc opté pour l'utilisation d'une solution de Kalliroscope. Les paillettes de Kalliroscope sont des paillettes de guanine, un pigment nacré, extraites de la peau et des écailles de poisson. Elles mesurent  $30 \times 6 \times 0,07 \mu\text{m}$  et ont une densité de  $1,62 \text{ g.cm}^{-3}$ . Elles sont fournies dans une solution équilibrée chimiquement ( $AQ - RF$ ) qu'on ajoute en faible quantité (1% en masse) à la solution étudiée (eau, polymères ou encore solutions micellaires) ce qui ne modifie pas ou peu leurs propriétés rhéologiques. Le mouvement de ces paillettes anisotropes dans un écoulement quelconque n'est pas trivial et on sait qu'elles sont sensibles à toute variation locale du champ de vitesse. Gauthier et al. [2002] ont montré qu'elles s'alignent suivant les lignes de courant de l'écoulement principal ( $v_\theta$  pour un écoulement de Couette) et peuvent tourner autour de leur axe principal qui s'oriente selon l'écoulement. De leur orientation dépendra la transmission de la lumière à travers la couche de fluide et suivant la surface exposée les paillettes refléteront la lumière avec une intensité différente. C'est cette différence de contraste qui par conséquent nous permettra de visualiser des instabilités et des zones turbulentes au sein de l'écoulement principal. La source de lumière utilisée est un écran lumineux rétro-éclairé ( $PHLOX LEDW - BL - 200 \times 200$ ) qui envoie une lumière blanche non focalisée tandis qu'une webcam standard (Logitech HD Webcam C615) filme ou enregistre des images de l'écoulement.

## 2.2 L'imagerie ultrasonore : une technique échographique

L'imagerie ultrasonore que nous allons développer à présent, est une technique échographique très utilisée en imagerie médicale (cœur, fœtus...). Elle utilise des séries d'émissions focalisées à différents endroits dans l'échantillon et à partir desquelles une seule image est reconstruite. L'imagerie Doppler peut être aussi utilisée pour mesurer une composante de la vitesse d'écoulement [Jensen, 1996]. Dans des approches plus

récentes de vélocimétrie ultrasonore, des images successives sont stockées et corrélées deux à deux (de la même manière qu'en Vélocimétrie par Imagerie de Particules (PIV) en optique) pour remonter au champ du déplacement à deux dimensions entre deux images. En général, cette technique dite « EchoPIV » est basée sur une sonde standard dont la fréquence maximale d'acquisition des images est de 200 Hz ce qui est suffisant pour l'imagerie médicale et pour le diagnostic [Kim et al., 2004], mais trop peu pour suivre un phénomène transitoire ou des dynamiques rapides en matière molle. Des systèmes d'imagerie haute-résolution fonctionnant à des fréquences pouvant aller jusqu'à 30 MHz ont été développés pour réaliser une « micro EchoPIV » : des écoulements de Poiseuille dans des modèles de vaisseaux capillaires sanguins de diamètre 0.6 mm et des écoulements sanguins dans des petits animaux ont été imagés avec une résolution spatiale de 60  $\mu\text{m}$  à des fréquences d'acquisition allant jusqu'à 100 Hz [Qian et al., 2010].

La description de la technique d'imagerie ultrasonore que nous allons présenter ici a fait l'objet d'une publication dans Review of Scientific Instruments [Gallot et al., 2013]. Grâce à leurs connaissances en programmation, Thomas GALLOT (post-doctorant dans l'équipe avant le démarrage de la thèse présentée ici) et Vincent GRECARD (doctorant jusqu'en juillet 2012) ont été tous deux d'une aide précieuse dans la mise en place de la technique.

### 2.2.1 Imagerie d'écoulement par ultrasons

Initialement limitée à un transducteur unique permettant d'accéder à un profil de vitesse à une seule hauteur de la cellule de Taylor-Couette [Manneville et al., 2004], la technique de visualisation ultrasonore a été étendue à deux dimensions au début de mon travail de thèse. Le dispositif est maintenant équipé d'une sonde ultrasonore constitué de 128 transducteurs indépendants qui fonctionnent en tant qu'émetteurs et récepteurs. Cette sonde, développée par Imasonic, est contrôlée par tout un dispositif électronique d'émission-réception construit par la société Lecœur Électronique.

Les émetteurs peuvent être utilisés de deux manières différentes. Ils peuvent soit émettre des impulsions de tension ajustable (de 10 à 230 V) et de largeur réglable (de 25 ns à 3  $\mu\text{s}$ , temps de montée et de descente inférieur à 10 ns) dont les séquences en temps sont programmables avec une fréquence maximale de répétition des tirs  $f_{PRF} = 20$  kHz (émission par impulsion), soit générer des formes d'onde arbitraires avec une largeur de bande passante de 10 MHz et une amplitude pic-à-pic maximale de 100 V (émetteurs analogiques). Les émetteurs analogiques permettent d'envoyer des fortes puissances acoustiques à des fréquences centrales pouvant aller jusqu'à 10 MHz alors que l'émission par impulsions est utilisée lorsqu'une plus grande largeur de bande passante (supérieure à 10 MHz) est nécessaire. Dans cette thèse, seules les émissions par impulsions ont été utilisées pour piloter la sonde ultrasonore.

Chaque récepteur est composé d'un convertisseur analogique-numérique linéaire (12 bits) cadencé à une fréquence d'échantillonnage  $f_s = 160$  MHz (largeur de la bande passante : 1 à 30 MHz), d'un amplificateur d'un gain maximal de 80 dB et d'une mémoire SDRAM de 32 Méch. L'impédance d'entrée est de 50  $\Omega$ . Un ensemble de processeurs en temps réel est aussi installé, ce qui est utile pour visualiser les données ultrasonores en temps réel et pour les transferts rapides vers l'ordinateur. L'électronique de la sonde

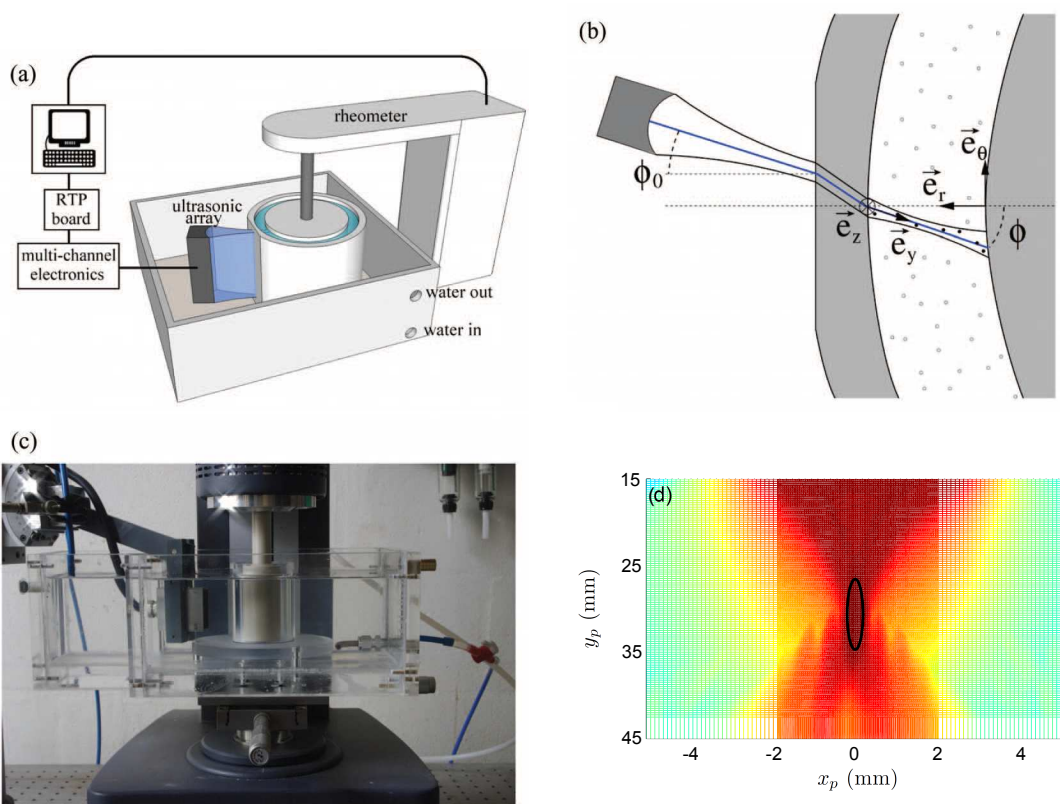


FIGURE 2.1 – **Schémas et photo du montage expérimental.** (a) Schéma à trois dimensions montrant le couplage entre les mesures rhéologiques et les mesures vélocimétriques. (b) Schéma vu du haut de l'entrefer de la cellule de Couette dans lequel ont été ajoutés les traceurs ultrasonores ainsi que la représentation des différents angles et axes définis dans le texte. (c) Photo vue de profil montrant la cuve d'eau dans laquelle ont été disposées la sonde ultrasonore et la cellule de Couette ici de dimensions  $R_i = 23$  mm et  $R_o = 25$  mm. (d) Carte du champ de pression mesurée à l'aide d'un hydrophone piloté par des platines de translation à une altitude  $z_p$  centrée sur le milieu de la hauteur de la sonde. La position de la sonde est  $(x_c, y_c) \simeq (0, 0)$  dans le référentiel des platines. On vérifie que la sonde est focalisée à  $F = 30$  mm et que la tache focale a une longueur  $l_f \simeq 7$  mm et une largeur  $w_f \simeq 300$   $\mu\text{m}$ .

ultrasonore est programmée sous Matlab et les données acquises sont stockées sur le disque dur du PC pour un traitement ultérieur des données que nous décrirons dans le paragraphe 2.2.3.

La sonde ultrasonore utilisée dans cette thèse a été réalisée sur mesure par l'entreprise Imasonic et est constituée de 128 transducteurs piézoélectriques. Les transducteurs ont une taille de  $200$   $\mu\text{m}$  et sont espacés de  $50$   $\mu\text{m}$ , ce qui donne une hauteur d'acquisition pour la sonde de  $32$  mm. Ils fonctionnent à une fréquence centrale  $f = 15$  MHz avec une largeur de bande passante à  $-6$  dB de  $8$  MHz. La vitesse du son dans l'eau à  $20^\circ\text{C}$  a été mesurée et vaut  $c = 1480$   $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  [Pierce, 1994], par conséquent la longueur d'onde dans l'eau est égale à  $\lambda = c/f \simeq 100$   $\mu\text{m}$ . Dans la direction verticale, c'est-à-dire dans la direction perpendiculaire à la direction de propagation, les transducteurs ont une ouverture  $D = 10$  mm avec une forme cylindrique de rayon  $30$  mm [voir la figure 2.1(a)]. Cela entraîne une focalisation du faisceau à une distance  $F = 30$

mm de la sonde et la tache focale a une longueur  $l_f$  et une largeur  $w_f$  à -6 dB qui sont estimées respectivement à  $l_f \simeq 8\lambda F^2/D^2 \simeq 7$  mm et  $w_f \simeq \lambda F/D \simeq 300$   $\mu$ m.

Comme la région qui nous intéresse est l'entrefer de la cellule de Couette, on centrera la tache focale au milieu de l'entrefer et on l'assimilera à une fine tranche rectangulaire de hauteur 32 mm, de longueur 2 mm et d'épaisseur 300  $\mu$ m. La taille de la tache focale a été vérifiée expérimentalement à l'aide d'un hydrophone qui, synchronisé avec l'électronique de la sonde et piloté par un jeu de platines de translation nous a permis de cartographier le champ de pression dans tout l'espace. La figure 2.1(d) montre une coupe  $XY$  de ce champ de pression à une altitude  $z_p$  correspondant au milieu de la hauteur de la sonde dans le référentiel  $(x_p, y_p, z_p)$  des platines. La position du centre de la sonde se trouvant à  $(x_c, y_c) \simeq (0, 0)$  on vérifie que la sonde est bien focalisée à  $F = 30$  mm et que la taille de la tache focale correspond à celle estimée. Enfin dans le but de détecter un déplacement non nul dans le matériau cisailé, la sonde ultrasonore est inclinée d'un angle  $\phi_0 \simeq 5^\circ$  par rapport à la normale du cylindre extérieur. Après réfraction, le vrai angle d'incidence dans l'échantillon, noté  $\phi$  est proche de  $\phi_0$  mais est légèrement différent comme le montre la figure 2.1(b). Ce paramètre sera déterminé précisément grâce à la procédure de calibration décrite dans le paragraphe 2.2.5.

### **2.2.2 Processus d'acquisition des speckles ultrasonore**

Notre technique d'imagerie est basée sur l'« imagerie par onde plane » introduites par Sandrin et al. [1999] dans le but d'augmenter d'un facteur 10 voire 100 la résolution temporelle de l'imagerie ultrasonore standard. Une onde plane est générée par l'émission de tirs simultanés de tous les transducteurs. Le signal envoyé par les transducteurs est constitué d'une impulsion d'amplitude 100 V. Les échos rétro-diffusés par l'échantillon reçus en retour par ces mêmes transducteurs sont amplifiés, enregistrés et stockés par Matlab dans 128 fichiers correspondant aux différentes voies électroniques. L'émission de cette onde plane pulsée est répétée  $N$  fois avec une fréquence de répétition  $f_{PRF}$  ( $PRF$  pour « Pulse Repetition Frequency » en anglais) ce qui constitue une « séquence ». Plusieurs séquences identiques (même nombre de tirs, mais  $PRF$  adaptable pour chaque séquence) peuvent être répétées jusqu'à  $N_{seq} = 512$ . Le nombre de tirs  $N$  par séquence est limité à 8192 émissions et par la mémoire totale de 32 Mpts (méga-points ou méga-échantillon) disponible par voie. Une fois que toutes les séquences de tirs ont été exécutées les données ultrasonore sont rapatriées sur le PC et sont disponibles pour le post-traitement.

Cette technique d'imagerie par onde plane a été utilisée pour suivre des ondes de cisaillement dans le corps humain et pour déduire des informations intéressantes sur ses propriétés élastiques locales. Elle est connue sous le nom d'élastographie transitoire (« transient elastography » en anglais) est récemment passé en temps réel grâce aux unités de processeurs graphiques (GPUs) [Montaldo et al., 2009]. La fréquence de répétition des tirs  $f_{PRF}$ , et par conséquent la fréquence d'acquisition, est alors seulement limitée par le temps de vol total, temps mis par l'onde ultrasonore pour faire l'aller-retour entre la sonde et le cylindre intérieur. Dans notre dispositif expérimental, la distance totale séparant la sonde de la cellule de Taylor-Couette est de l'ordre de 60 mm ce qui correspond à un temps de vol d'environ 40  $\mu$ s et à une fréquence maximale d'acquisition de 25 kHz.

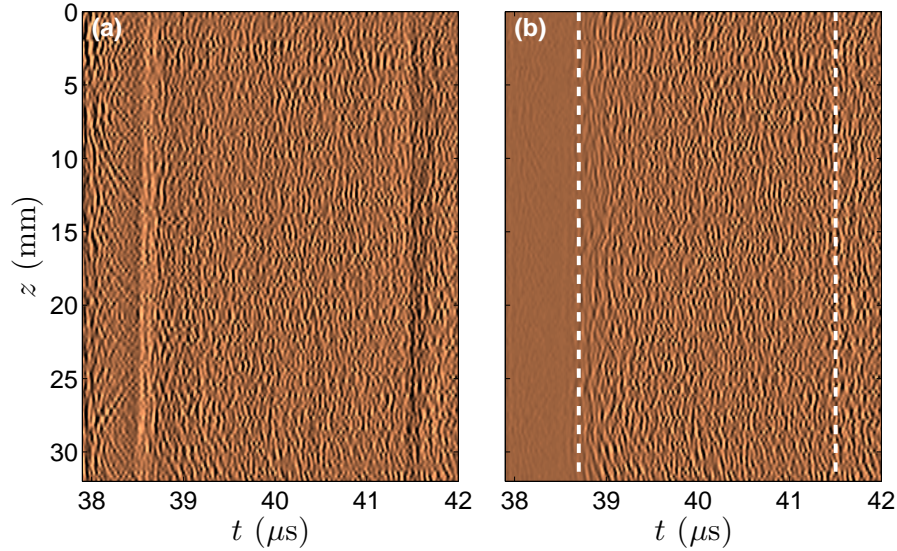


FIGURE 2.2 – **Signaux de speckle bruts et corrigés.** (a) Signal de speckle brut  $s_i(t, z)$  enregistré après l'émission d'une onde plane et représenté en fonction du temps  $t$  et de la position verticale  $z$  des transducteurs le long de la sonde. (b) Signal de speckle corrigé  $\tilde{s}_i(t, z)$  après avoir enlevé les échos fixes de  $s_i(t, z)$ . Les lignes en pointillés blancs à  $t = 38,7$  et  $t = 41,5$   $\mu\text{s}$  indiquent les limites de l'entrefer déduites de la procédure de calibration décrite dans le paragraphe 2.2.5. Les signaux sont codés en niveaux de couleurs linéaires. Ces expériences ont été réalisées avec une suspension newtonienne de billes de verre creuses dans de l'eau de concentration 1 % en masse et avec un taux de cisaillement appliqué de  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ .

Dans notre cas, le but est de suivre la déformation et l'écoulement de matériaux mous. Le signal ultrasonore rétro-diffusé peut être renvoyé par la microstructure du fluide lui-même ou obtenu artificiellement en rajoutant dans l'échantillon des microsphères qui jouent le rôle d'agents de contraste acoustique. Dans les deux cas, on appelle ce signal : « speckle ultrasonore » et la technique de vélocimétrie correspondante : « Vélocimétrie de Speckle Ultrasonore » (USV). Notons qu'une concentration de 1% en masse de microsphères nous donne généralement un bon rapport signal-bruit. Notons également que l'imagerie par onde plane conduit souvent à une forte perte de résolution latérale. Pour la minimiser, un processus de formation de voie, décrit ci-dessous, est exécuté une fois le signal reçu.

### 2.2.3 Des données de speckle brut aux images ultrasonores

#### Le signal de speckle brut

Le speckle ultrasonore retro-diffusé par l'échantillon vers la sonde résulte de l'interférence entre toutes les rétro-diffusions de l'onde plane incidente par les traceurs présents dans la tranche de fluide soumise aux ultrasons ( $32 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} \times 300 \mu\text{m}$ ). En utilisant des concentrations faibles en traceurs, on s'assure que les échos ne subissent pas de multiples réflexions au cours de leur propagation. Il y a donc une correspondance directe entre le temps de vol des ultrasons et la position du traceur [Jensen,

1996]. Notons, et c'est le cas pour toutes les techniques d'imagerie, que la diffusion multiple constitue une forte limitation de l'instrument considéré et plus particulièrement dans le cas de suspensions concentrées pour lesquelles une analyse spécifique des échos diffusés de manière multiple doit être prise en compte [Page et al., 2000]. Dans le cas opposé d'un échantillon qui est transparent aux ultrasons, ajouter des agents de contraste acoustique dans le matériau permet d'avoir un bon contrôle du signal rétro-diffusé. Il faut cependant s'assurer que les propriétés du matériau ne sont pas affectées par l'ajout de ces traceurs.

Dans tous les cas, le signal enregistré sur une voie de réception donnée est la somme des échos des traceurs situés à différentes positions dans le plan de l'image. Un exemple d'un tel signal de speckle ultrasonore brut enregistré dans une suspension aqueuse diluée de billes de verre creuses polydisperses (Potters Spherichel, de diamètre moyen  $6 \mu\text{m}$  et de densité moyenne  $1,1 \text{ g.cm}^{-1}$ ) est tracé en fonction du temps et de l'espace sur la figure 2.2(a). Ici, le temps  $t$  correspond au temps où le signal de pression est échantillonné par le récepteur. L'origine  $t = 0$  correspond au moment d'émission de l'impulsion incidente. En d'autres termes,  $t$  est le temps de vol ultrasonore de l'aller-retour entre l'échantillon et la sonde ultrasonore. La coordonnée verticale  $z$  correspond à la position le long de la sonde ultrasonore, l'origine  $z = 0$  étant prise en haut de la sonde qui elle-même est positionnée à environ  $6 \text{ mm}$  du haut de la cellule de Taylor-Couette [voir Fig.2.1(a)]. Cette représentation à deux dimensions des signaux ultrasonores rétro-diffusés  $s(t, z)$ , aussi appelée « B-scan » dans la littérature, fait apparaître clairement les échos de l'onde plane incidente sur le cylindre extérieur et sur le cylindre intérieur comme le montrent les lignes verticales en pointillés de la figure 2.2(b) situées respectivement à  $t \simeq 38,7$  et  $41,5 \mu\text{s}$ . Entre le stator et le rotor, le signal ultrasonore est constitué d'une superposition de fronts d'ondes sphériques qui correspondent aux échos rétro-diffusés par les billes de verre dans l'entrefer.

### Procédure pour enlever les échos fixes

La visualisation de  $N$  signaux ultrasonores consécutifs  $\{s_i(t, z)\}_{i=1\dots N}$  (correspondant à l'émission de  $N$  tirs successifs), révèlent que les fronts d'onde sphériques provenant des billes de verre, qui sont en mouvement et qui se comportent comme des traceurs vu qu'ils sont charriés par l'écoulement, sont mélangés avec d'autres fronts d'onde qui restent fixes même lorsqu'on applique un cisaillement (voir la vidéo supplémentaire 2 avec  $N = 200$ ) [Gallot et al., 2013]. Ces échos fixes sont dus à des ondes diffractées par les bords de la sonde ultrasonore qui sont par les différentes interfaces (surface libre de l'eau, l'arrière de la cuve d'eau, rotor, stator, etc.). La plupart de ces réflexions sont enregistrées avant l'onde plane principale renvoyée par l'entrefer de la cellule de Couette ( $t \simeq 38.7 \mu\text{s}$ ) mais les échos correspondant au stator et au rotor peuvent s'étendre sur une partie de la fenêtre temporelle qui nous intéresse (voir la vidéo supplémentaire 2) [Gallot et al., 2013]. De plus la rugosité du cylindre extérieur aussi bien que des petits défauts dans le cylindre intérieur peuvent aussi générer des échos fixes indésirables. Comme en imagerie biomédicale où les échos fixes, dus aux parois des artères par exemple, conduisent à des artefacts dans la détection de la vitesse du sang, on se doit de s'affranchir de ces échos indésirables. Pour cela, nous avons choisi de soustraire le signal de speckle  $\langle s_i(t, z) \rangle_i$  moyenné sur les  $N$  signaux successifs

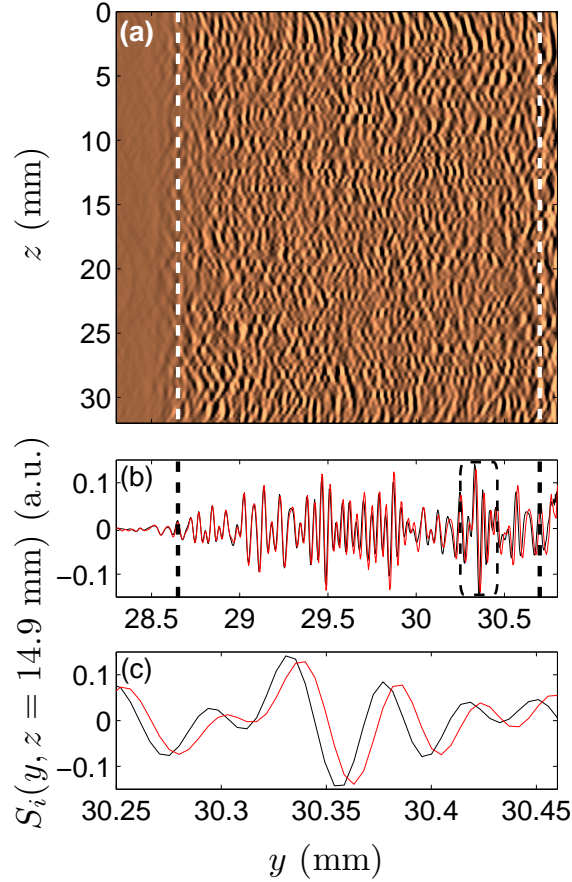


FIGURE 2.3 – **Signaux de speckle après formation de voie.** (a) Image de speckle après formation de voie  $S_i(y, z)$  obtenue à partir du signal de speckle corrigé  $\tilde{s}_i(t, z)$  de la figure 2.2(b) et montré en fonction de la distance  $y$  aux transducteurs et de la position verticale  $z$  des transducteurs.  $S_i$  est normalisée par sa valeur maximale et codée en niveaux de couleurs linéaires. (b) Deux signaux successifs de speckle après formation de voie  $S_i(y, z)$  (en noir) et  $S_{i+1}(y, z)$  (en rouge) à une position donnée  $z = 14,9$  mm.  $S_i$  et  $S_{i+1}$  correspondent à deux émissions d’ondes planes différentes séparées d’un intervalle de temps  $\delta t = 2$  ms. (c) Zoom de  $S_i(y, z)$  (en noir) et  $S_{i+1}(y, z)$  (en rouge) sur une fenêtre de largeur  $\Delta y = 2\lambda$  proche du cylindre intérieur [indiquée par la boîte en pointillés dans (b)]. On met ainsi en évidence un déplacement notable du speckle vers la droite lorsqu’on passe de  $S_i$  à  $S_{i+1}$ . Les lignes en pointillés à  $y = 28,7$  et  $y = 30,7$  mm indiquent les limites de l’entrefer déduites de la procédure de calibration décrite dans le paragraphe 2.2.5. Même expérience que pour la figure 2.2.

$s_i(t, z)$  :

$$\tilde{s}_i(t, z) = s_i(t, z) - \langle s_i(t, z) \rangle_i. \quad (2.1)$$

La figure 2.2(b) est le résultat obtenu pour l’expérience de la figure 2.2(a) d’une série de  $N = 200$  tirs séparés de  $\delta t = 2$  ms (c’est-à-dire une fréquence de répétition des tirs  $f_{PRF} = 500$  Hz). La suspension newtonienne est ici cisailée à un taux de cisaillement constant  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ . L’acquisition des données ultrasonores est démarrée suffisamment longtemps après le début de la mise en cisaillement, c’est-à-dire une fois que l’écoulement est laminaire et stationnaire. La figure 2.2 montre que notre procédure pour

enlever les échos fixes est très efficace. Il ne reste que les échos correspondant aux traceurs qui se déplacent dans l'entrefer d'une quantité suffisante sur la durée totale de la séquence d'acquisition. Ainsi les fronts d'onde rétro-diffusés par les billes de verre s'annulent lorsqu'on moyenne sur le nombre total de tirs, ce qui n'est pas le cas des échos renvoyés par les parois et les éléments fixes du dispositif expérimental. Dans certains cas où le fluide peut rester immobile dans certaines parties de l'entrefer (c'est le cas notamment des fluides à seuil qui ne sont cisailés que localement), la moyenne est prise sur des séquences de tirs exécutées à des taux de cisaillement importants où la totalité de l'échantillon est mise en écoulement. Une fois les speckles ultrasonore acquis et les échos fixes retirés, le processus de formation de voie peut être appliqué. Ce traitement ; que nous allons décrire à présent, est nécessaire pour former les images d'écoulements.

### Processus de formation de voie

Le processus de formation de voie est basé sur l'hypothèse de propagation d'une onde dans le régime de diffusion simple. Une image ultrasonore  $S_i(y, z)$  est formée à partir d'un signal de speckle corrigé  $\tilde{s}_i(t, z)$  (c'est-à-dire sans les échos fixes) en utilisant le processus standard de formation de voie [Sandrin et al., 1999] :

$$S_i(y, z) = \sum_{z_0} \tilde{s}_i(t(y, z, z_0), z), \quad (2.2)$$

où  $y$  est la distance à partir de la sonde ultrasonore le long de l'axe de propagation de l'onde ultrasonore (appelée encore « distance axiale ») et

$$t(y, z, z_0) = \frac{y + \sqrt{y^2 + (z - z_0)^2}}{c} \quad (2.3)$$

est le temps de vol ultrasonore entre un traceur situé à la position  $(y, z)$  dans l'entrefer et un transducteur situé à une altitude  $z_0$ . La notation  $c$  correspond à la vitesse du son dans l'eau. Notons que l'équation (2.3) ne prend ni en compte la vitesse du son dans le cylindre extérieur qui est fait en PMMA ( $c_{\text{PMMA}} \simeq 2500 \text{ m.s}^{-1}$ ) ni le fait que la vitesse du son dans l'échantillon peut différer de celle de l'eau. Dans tous les cas, la distance  $r$  qui nous intéresse, c'est-à-dire la position radiale dans l'entrefer, sera calculée à partir de  $y$  grâce au processus de calibration que nous décrirons dans le paragraphe 2.2.5. De plus, la somme dans l'équation (2.2) est prise sur 30 valeurs de  $z_0$  le long de  $z$  et non sur l'ensemble des 128 voies du réseau de transducteur. Ceci permet d'accélérer le traitement des données sans trop dégrader la résolution de l'image. On peut également noter que des fronts d'onde sont enregistrés au-delà de la position du cylindre intérieur (c'est-à-dire pour  $t > 41.5 \mu\text{s}$  sur la figure 2.2 et pour  $y > 30.7 \text{ mm}$  sur la figure 2.3). Ces échos correspondent à la diffusion de la réflexion de l'onde plane incidente sur le rotor [Manneville et al., 2004]. De plus, seuls les points pour  $y \lesssim 30.8 \text{ mm}$  sont considérés dans l'équation (2.3). L'image après formation de voie obtenue à partir de la figure 2.2(b) est montrée sur la figure 2.3(a). Les coupes en  $z = 14.9 \text{ mm}$  de deux images successives individuelles  $S_i(y, z)$  et  $S_{i+1}(y, z)$  sont montrés sur les figures 2.3(b) et 2.3(c) (voir aussi la vidéo supplémentaire 3 pour une série de  $N = 200$  images successives séparées par un intervalle de temps de 2 ms pour une suspension de billes de verre creuses cisailée à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ ).



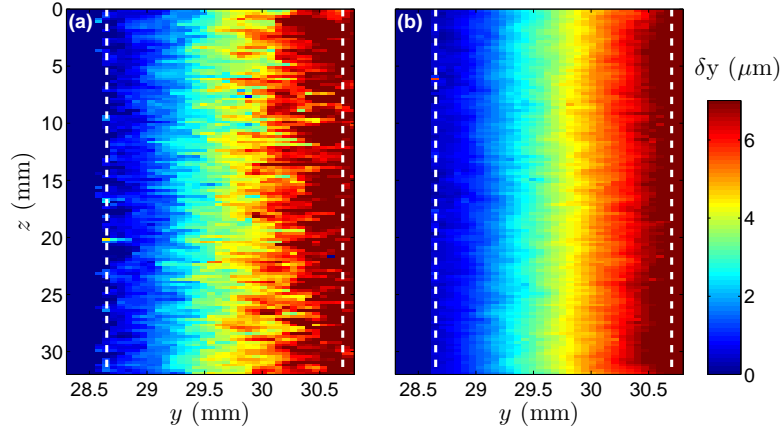


FIGURE 2.4 – **Images de déplacement.** (a) Image de déplacement  $\delta y_i(y, z)$  obtenue à partir de deux images successives de speckle  $S_i$  et  $S_{i+1}$  séparées de  $\delta t = 2$  ms. (b) Image de déplacement  $\langle \delta y_i(y, z) \rangle_i$  moyennée sur 199 corrélations de 200 images successives. Les lignes en pointillés à  $y = 28,7$  et  $y = 30,7$  mm indiquent les limites de l'entrefer déduites de la procédure de calibration décrite dans le paragraphe 2.2.5. Même expérience que pour la figure 2.2.

## 2.2.4 Champ de déplacement et vitesse axiale

Le déplacement du speckle suivant la direction  $y$  au point  $(y, z)$  entre deux tirs successifs  $i$  et  $i + 1$  est obtenu en cherchant le maximum du coefficient de corrélation suivant en fonction de  $\delta y$  [Sandrin et al., 2001; Manneville et al., 2004] :

$$C_i(y, z, \delta y) = \sum_{y'=y-\Delta y/2}^{y+\Delta y/2} S_i(y', z) S_{i+1}(y' + \delta y, z), \quad (2.4)$$

où  $\Delta y = 2\lambda \simeq 200 \mu\text{m}$  est la taille de la fenêtre de corrélation. Un exemple d'une telle fenêtre de corrélation est donnée sur les figures 2.4(b) et (c). Pour une position  $(y, z)$  donnée, la valeur  $\delta y$  qui maximise  $C_i(y, z, \delta y)$  est obtenue à partir d'une interpolation polynômiale du second degré de  $C_i$  et correspond au déplacement axial  $\delta y_i$  du speckle entre deux tirs consécutifs  $i$  et  $i + 1$  (ce qui donne une meilleure précision que le pas de la maille). En pratique, pour éviter des redondances dans les données de vitesses, un tel déplacement  $\delta y_i(y, z)$  n'est calculé que pour les positions dans l'entrefer  $y_k = y_0 + k\Delta y/3$ , où  $y_0$  correspond au début de l'entrefer et  $k$  est un entier. De ce fait pour une cellule de Taylor-Couette d'un entrefer de 2 mm, on obtient 30 points de mesure séparés d'environ  $65 \mu\text{m}$ . Une image des déplacements calculés à partir de deux images successives après formation de voie  $S_i$  et  $S_{i+1}$  est montrée sur la figure 2.4(a). Le gradient de vitesse est clairement visible même si le niveau de bruit est assez élevé du fait qu'on considère seulement deux tirs consécutifs. La figure 2.4(b) présente la cartographie des déplacements obtenue en moyennant  $\delta y_i(y, z)$  sur les  $N - 1 = 199$  corrélations correspondant à la séquence de 200 tirs montrée dans les vidéos supplémentaires 2 et 3. En moyennant ainsi sur une durée de 0,4 s on obtient un très faible niveau de bruit avec une variation typique de moins de 5 % lorsqu'on passe d'une voie à l'autre (voir l'insert de la figure 2.6). Comme attendu, l'écoulement est

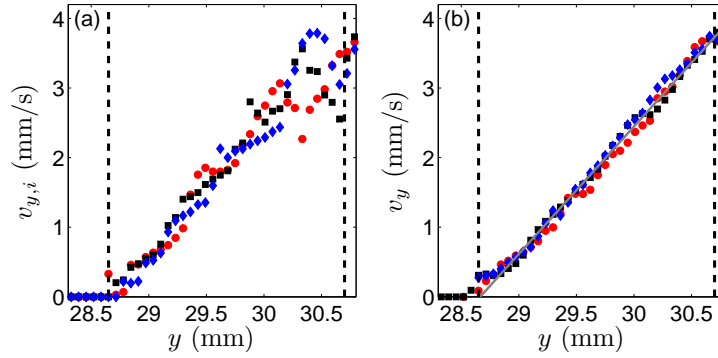


FIGURE 2.5 – **Profils de vitesse axiale.** (a) Profils de vitesse axiale  $v_{y,i}(y, z)$  obtenus à partir de deux images successives de speckle  $S_i$  et  $S_{i+1}$  séparées de  $\delta t = 2$  ms déjà utilisées sur la figure 2.4(a) et montrés à trois positions  $z = 7,4$  ( $\blacklozenge$ ),  $z = 15,1$  ( $\bullet$ ) et  $z = 22,4$  mm ( $\blacksquare$ ). (b) Profils de vitesse axiale  $v_y(y, z) = \langle v_{y,i}(y, z) \rangle_i$  moyennés sur 199 corrélations de 200 images successives pour les trois mêmes positions verticales. La ligne grise représente la meilleure interpolation linéaire de toutes les données moyennées sur  $z$ . Les lignes en pointillés à  $y = 28,7$  et  $y = 30,7$  mm indiquent les limites de l'entrefer déduites de la procédure de calibration décrite dans le paragraphe 2.2.5. Même expérience que pour la figure 2.2.

laminaire et homogène sur toute la hauteur de la cellule de Couette. Une image de la vitesse axiale est alors facilement déduite du champ de déplacement par la relation :

$$v_{y,i}(y, z) = \delta y_i(y, z) / \delta t, \quad (2.5)$$

où  $\delta t = 1/f_{PRF}$  est l'intervalle de temps entre deux tirs successifs. Par « vitesse axiale »  $v_y$ , on entend la projection du vecteur vitesse local  $\mathbf{v} = (v_r, v_\theta, v_z)$  sur l'axe de propagation ultrasonore  $y$  [voir Fig.2.2(b)]. Cela suppose que les traceurs suivent exactement le champ de vitesse de l'écoulement. Trois profils individuels de vitesse axiale  $v_{y,i}(y, z)$  déduits de la figure 2.4(a) sont tracés sur la figure 2.5(a) pour trois hauteurs différentes le long du réseau de transducteurs et la figure 2.5(b) montre leur moyenne temporelle  $v_y(y, z) = \langle v_i(y, z) \rangle_i$  sur 0,2 s. La gamme typique de vitesses accessibles avec notre instrument est de  $1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  à  $1 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . La limite supérieure est donnée par le maximum de la fréquence de répétition des tirs  $f_{PRF} = 20$  kHz alors que la limite inférieure correspond au point où le mouvement Brownien, la sédimentation des traceurs ou encore les vibrations mécaniques qui peuvent affecter la corrélation des signaux de speckle deviennent plus importants que la vitesse de l'écoulement.

### 2.2.5 Calibration du système

Dans le but de mesurer des champs de vitesse dans des fluides complexes cisailés, il est nécessaire de calibrer les données de vitesses axiales  $v_y$ . Une telle procédure de calibration a déjà été décrite en détail dans Manneville et al. [2004] et permet d'obtenir une valeur précise de l'angle d'incidence  $\phi$  et la position exacte  $y_0$  de la paroi extérieure. En bref, la procédure de calibration doit être effectuée sur un fluide newtonien à de faibles taux de cisaillement pour assurer un écoulement laminaire et purement tangentiel. Il faut donc que  $\mathbf{v} = (0, v_\theta, 0)$  et que  $v_y$  soit simplement une mesure de la projection

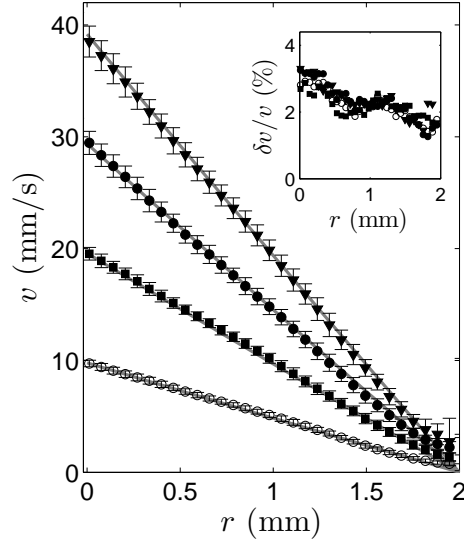


FIGURE 2.6 – **Profils de vitesse tangentielle.** Profils de vitesse tangentielle  $v(r)$  déduits de la procédure de calibration [Eq. (2.6) et (2.7)] avec  $y_0 = 28,66$  mm et  $\phi = 5,2^\circ$  pour différents taux de cisaillement appliqués :  $\dot{\gamma} = 5$  ( $\circ$ ), 10 ( $\blacksquare$ ), 15 ( $\bullet$ ), et  $20$   $\text{s}^{-1}$  ( $\blacktriangledown$ ). Les données ont été moyennées sur 199 corrélations successives et selon la direction verticale  $z$ . Les barres d'erreur montrent la déviation standard selon  $z$ . Les lignes grises sont les prédictions théoriques du profil de vitesse pour un fluide newtonien à ces différents taux de cisaillement [Eq. (2.11)]. En insert : la déviation relative  $\delta v/v$  définie comme le rapport entre la déviation standard de  $v(r, z)$  selon  $z$  et sa valeur moyenne  $v(r)$ . Expériences réalisées avec une suspension newtonienne de billes de verre creuses dans de l'eau à une concentration de 1 % en masse.

de la composante de la vitesse orthoradiale  $v_\theta$  sur  $y$ . Dans notre géométrie et pour des solutions aqueuses diluées, cela correspond à  $\dot{\gamma} \lesssim 40$   $\text{s}^{-1}$ . L'intersection avec l'axe  $v_y = 0$  des ajustements linéaires des données de  $v_y$  en fonction de  $y$  moyennées sur  $N \simeq 200$  tirs et sur la direction verticale  $z$  pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}$  nous donne la position  $y_0$  du stator avec une incertitude d'environ  $20$   $\mu\text{m}$  (voir la figure 2.5(b) pour  $\dot{\gamma} = 20$   $\text{s}^{-1}$ ). De plus l'angle d'incidence  $\phi$  est estimé avec une incertitude de  $\pm 0.1^\circ$  en cherchant la valeur de  $\phi$  qui correspond le plus avec les profils de vitesse attendus pour les différents taux de cisaillement appliqués [Manneville et al., 2004]. Une fois  $y_0$  et  $\phi$  déterminés, la vitesse axiale  $v_y(y, z)$  est convertie en une vitesse tangentielle apparente  $v(r, z)$ , où  $r$  correspond à la distance à partir du cylindre intérieur en rotation, grâce aux relations :

$$r = \sqrt{R_o^2 + (y - y_0)^2 - 2R_o(y - y_0) \cos \phi} - R_i, \quad (2.6)$$

$$v(r, z) = \frac{R_i + r}{R_o \sin \phi} v_y(y, z). \quad (2.7)$$

Dans la limite des petits entrefers  $d/R_i \ll 1$ , les équations précédentes deviennent :

$$r \simeq d - (y - y_0) \sin \phi, \quad (2.8)$$

$$v(r, z) \simeq \frac{v_y(y, z)}{\sin \phi}. \quad (2.9)$$

Une fois encore, il est crucial de souligner que  $v(r, z)$  déduit des équations (2.7) et (2.9) correspond à la composante orthoradiale  $v_\theta$  du champ de vitesse  $\mathbf{v}$  seulement quand l'écoulement est purement tangentiel. Dans le cas général d'un écoulement tridimensionnel avec des vitesses radiale  $v_r$  et verticale  $v_z$  non nulles, la mesure par USV donne  $v_y \simeq v_\theta \sin \phi + v_r \cos \phi$  dans l'approximation des petits entrefers. Par conséquent, la vitesse  $v$  définie par les équations (2.7) et (2.9) est insensible à la composante verticale  $v_z$  mais peut contenir une contribution non négligeable de la composante radiale  $v_r$  :

$$v(r, z) \simeq v_\theta(r, z) + \frac{v_r(r, z)}{\tan \phi}. \quad (2.10)$$

La figure 2.6 présente les résultats de la procédure de calibration dans une suspension de billes de verre creuses à 1 % en masse dans de l'eau. Les données ultrasonores ont été acquises en utilisant une unique séquence de  $N = 200$  tirs avec une fréquence de répétition des tirs adaptée au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  appliqué :  $f_{PRF} = 50\dot{\gamma}$ . On peut noter ici que une fréquence de répétition des tirs de  $f_{PRF} = 20\dot{\gamma}$  conviendrait également<sup>1</sup>. Quel que soit le taux de cisaillement appliqué, les profils de vitesse coïncident parfaitement avec les prédictions théoriques pour un fluide Newtonien :

$$v(r) = v_0 \left(1 + \frac{r}{R_i}\right) \left[ \frac{\left(\frac{R_o}{R_i+r}\right)^2 - 1}{\left(\frac{R_o}{R_i}\right)^2 - 1} \right] \simeq v_0 \left(1 - \frac{r}{d}\right), \quad (2.11)$$

où  $v_0$  est la vitesse du cylindre intérieur imposée par le rhéomètre. Le dernier terme dans l'équation (2.11) résulte de la limite des petits entrefers pour laquelle  $v_0 \simeq \dot{\gamma}d$ . Les seules déviations notables à ces prédictions sont observées au voisinage du stator ( $r \simeq 2$  mm) où la vitesse est légèrement surestimée. Un tel artéfact peut être attribué à notre procédure pour retirer les échos fixes. En effet, les vitesses proches du stator sont faibles, et en soustrayant la moyenne sur les  $N$  tirs successifs, on élimine naturellement les contributions des vitesses proches de zéro.

---

1. Le choix de la valeur de  $f_{PRF}$  repose sur un compromis entre suivre correctement les traceurs acoustiques au sein de l'échantillon (il faut pour cela que  $f_{PRF}$  ne soit pas trop faible) et avoir des déplacements de ces particules suffisamment grands (il faut pour cela que  $f_{PRF}$  ne soit pas trop élevée). Elle dépend par conséquent de l'angle  $\Phi$  de la sonde ultrasonore.



## Deuxième partie

# INSTABILITÉ ET TURBULENCE SOUS CISAILLEMENT



# Chapitre 3

## L'eau : un fluide pas si simple

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Mise en écoulement dans le régime laminaire . . . . .</b>	<b>56</b>
<b>3.2</b>	<b>Instabilité linéaire de Taylor-Couette . . . . .</b>	<b>57</b>
3.2.1	Le viscosimètre de Couette-Mallock . . . . .	57
3.2.2	L'instabilité linéaire de Taylor dans le cas où le cylindre ex- térieur est fixe . . . . .	59

---



Dans cette partie, nous nous concentrons sur l'instabilité inertielle à température fixée de fluides incompressibles s'écoulant entre deux cylindres concentriques. Dans un premier temps, nous nous focalisons sur une solution newtonienne constituée d'une suspension de sphères de verre creuses dans de l'eau. Les résultats présentés ont fait l'objet de deux publications [Gallot et al., 2013] et [Fardin et al., 2014a].

### 3.1 Mise en écoulement dans le régime laminaire

Dans le but de mettre en évidence la grande résolution temporelle de notre technique rhéo-ultrasonore, nous pouvons résoudre l'établissement d'un écoulement laminaire, purement orthoradial, dit écoulement de Couette (CF) pour une solution newtonienne constituée de billes de verre dans de l'eau. Pour cela le fluide, initialement au repos, est soumis à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$  à  $t = 0$ . Dans la suite du manuscrit, le temps  $t$  désignera le temps écoulé depuis le démarrage en cisaillement (alors que dans la partie 2 il désignait le temps de vol ultrasonore). Pour cette expérience, nous avons utilisé une séquence de  $N = 8000$  tirs avec une fréquence de répétition des tirs  $f_{PRF} = 1 \text{ kHz}$ . La figure 3.1(a) montre quelques cartes du champ de vitesse correspondant à des moyennes sur 50 tirs successifs toutes les 25 ms (voir aussi la vidéo supplémentaire 4). Les signaux de taux de cisaillement et de contrainte de cisaillement qui sont enregistrés simultanément sont tracés sur la figure 3.1(b). Étant donné que l'écoulement reste clairement homogène le long de la direction verticale et ce durant toute la durée de l'expérience, on peut moyenner les données de vitesse sur  $z$  et tracer quelques profils de vitesse à différents instants  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  représentés sur la figure 3.1(c).

Comme attendu, les profils de vitesse sont entièrement établis seulement pour  $t \gtrsim \tau$ , où  $\tau \equiv d^2/\nu \simeq 1 \text{ s}$ , est le temps de dissipation visqueuse sur la taille de l'entrefer. Aux temps courts, une couche limite se développe au cylindre intérieur en rotation et se propage vers le cylindre extérieur fixe. L'existence d'un cylindre extérieur, la courbure mais aussi la fonction d'entrée complexe pour la vitesse du rotor ont tous un impact non négligeable sur le transitoire de l'écoulement. La complexité de cette fonction d'entrée  $\dot{\gamma}(t)$  illustrée dans l'insert de la figure 3.1(b) est due au fait que nous utilisons un rhéomètre à contrainte imposée qui fonctionne en déformation imposée grâce à une boucle de rétroaction. En particulier le fait que la contrainte de cisaillement présente un important dépassement dans les valeurs négatives peut être attribué au couplage entre la rétroaction du rhéomètre sur le couple appliqué, l'inertie importante de notre géométrie et la réponse du fluide. Les expériences faites avec une géométrie plus petite montrent une convergence plus rapide du taux de cisaillement appliqué vers sa valeur limite avec des oscillations beaucoup plus faibles. Travailler avec un rhéomètre à déformation imposée nous permettrait d'obtenir une meilleure estimation de la réponse réelle du fluide à cette marche en taux de cisaillement. Pour la suite des expériences, nous avons donc privilégié la petite géométrie  $R_i = 23 \text{ mm}$ ,  $R_o = 25 \text{ mm}$ .

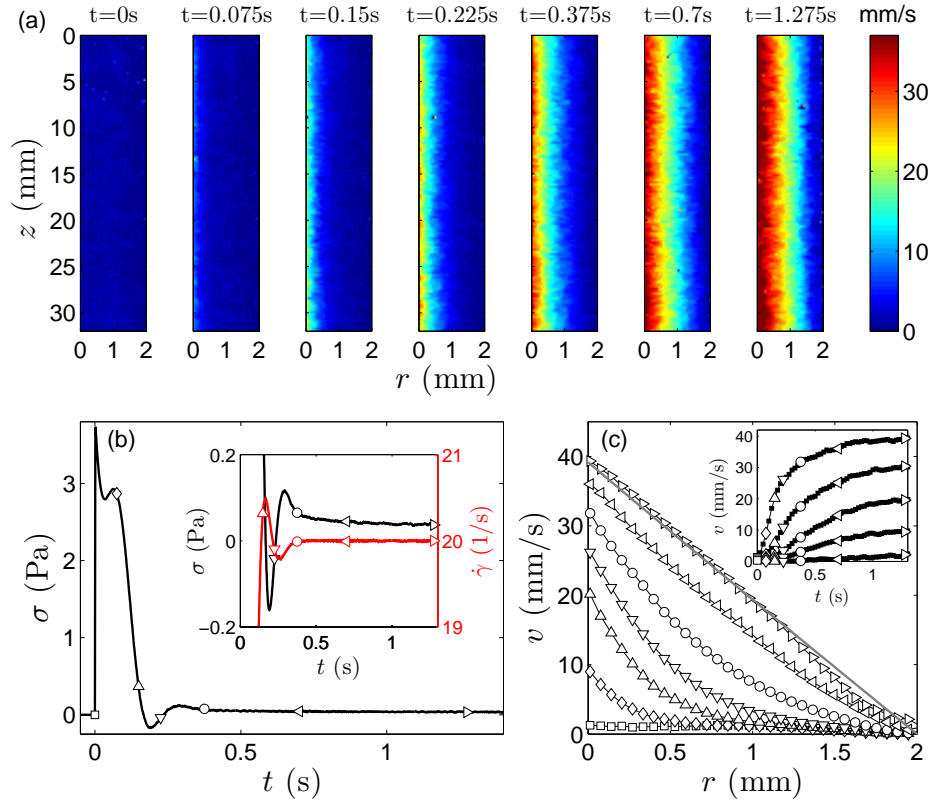


FIGURE 3.1 – Transition vers le régime laminaire d’une suspension newtonienne de billes de verre creuses dans de l’eau à une concentration de 1% en masse en appliquant un saut en taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 0$  à  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$ . (a) Cartes du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués en haut de chaque image. Chaque image correspond à une moyenne sur 50 tirs envoyés toutes les millisecondes (voir aussi la vidéo supplémentaire 4). (b) Signal de réponse en contrainte  $\sigma(t)$  enregistré simultanément et synchronisé en temps avec les images de vitesse. Les symboles indiquent les temps correspondants aux images de vitesse montrées en (a). En insert : superposition de la réponse en stress  $\sigma(t)$  (en noir) et du signal instantané du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre. (c) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur  $z$  de la sonde à différents temps  $t = 0$  ( $\square$ ),  $0,075$  ( $\diamond$ ),  $0,15$  ( $\triangle$ ),  $0,225$  ( $\nabla$ ),  $0,375$  ( $\circ$ ),  $0,7$  ( $\triangleleft$ ), et  $1,275$  s ( $\triangleright$ ) en accord avec (a) et (b). La ligne grise correspond au profil de vitesse linéaire attendu pour un fluide Newtonien dans le régime laminaire à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$  [Eq. (2.11)]. En insert : de haut en bas, évolution temporelle de  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  à  $r = 0,01 ; 0,46 ; 0,98 ; 1,43$  et  $1,95$  mm. ( $R_i = 48$  mm,  $R_o = 50$  mm)

## 3.2 Instabilité linéaire de Taylor-Couette

### 3.2.1 Le viscosimètre de Couette-Mallock

Les géométries de cylindres concentriques furent construites indépendamment par Mallock [Mallock, 1888] et par Couette [Couette, 1888] dans le but de mesurer la viscosité de l’eau ou de l’air. Grâce à leurs expériences, ils trouvèrent que la viscosité de l’eau est constante mais seulement pour des écoulements de faibles vitesses pour

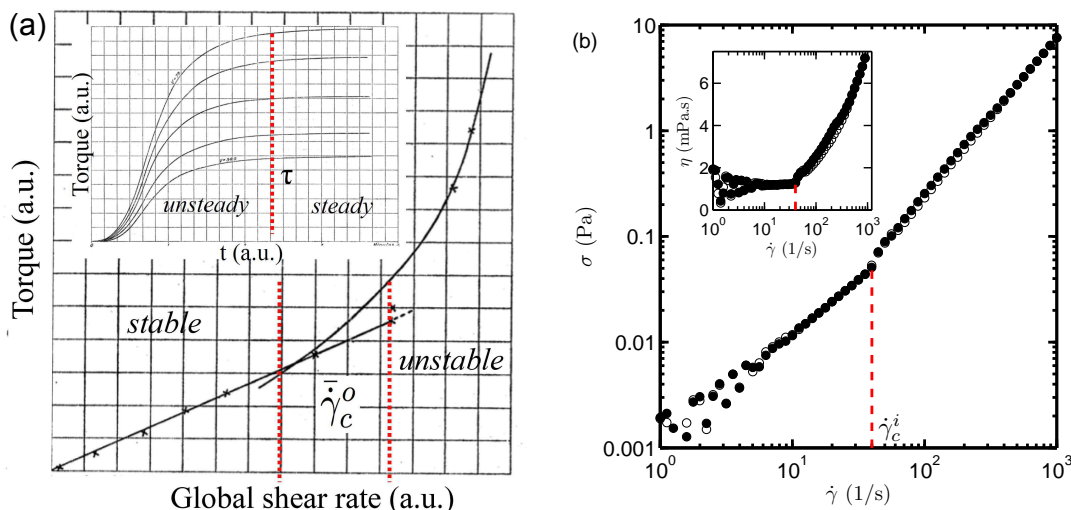


FIGURE 3.2 – **Rhéologie apparente de l'eau : signature d'une instabilité de l'écoulement.** (a) Courbe d'écoulement illustrant le rhéo-épaississement apparent de l'eau lorsque seul le cylindre extérieur est mis en rotation. Les symboles sont des points de mesures expérimentaux et les lignes sont des guides pour les yeux. Il existe dans ce cas, toute une gamme de taux de cisaillement seuil  $\dot{\gamma}_c^o$  ce qui est caractéristique d'une transition non linéaire. Insert : augmentation du couple après des mises en écoulements pour différents valeurs de  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$ . [Figure adaptée de Mallock [1888].] (b) Courbe d'écoulement illustrant le rhéo-épaississement apparent de l'eau lorsque seul le cylindre intérieur tourne. La superposition de la rampe montante (symboles pleins) et descendante (symboles vides) montre dans ce cas l'absence d'hystérésis. De plus, le seuil  $\dot{\gamma}_c^i$  est dans ce cas bien défini ce qui est caractéristique d'une transition linéaire.

lesquels le taux de cisaillement global était inférieur à une valeur critique :  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$ . Au-delà de cette limite, le fluide présente un rhéo-épaississement apparent (comme les rhéologues l'appellent maintenant). C'est-à-dire que la viscosité apparente augmente avec l'amplitude du gradient de vitesse. Plus précisément, dans le cas où seul le cylindre intérieur tourne, ils trouvèrent que le seuil  $\dot{\gamma}_c^i$  est constant alors que dans le cas où seul le cylindre extérieur est en rotation le seuil  $\dot{\gamma}_c^o$  est beaucoup plus « variable » (nous reviendrons sur ce terme), c'est-à-dire qu'il existe une gamme de taux de cisaillement plus vaste pour laquelle la viscosité peut rester constante. La figure 3.2(a) montre la « courbe d'écoulement » obtenue par Mallock pour laquelle seul le cylindre extérieur tourne. Au-delà de  $\dot{\gamma}_c^o$  les mesures du couple présentent de grandes fluctuations dans le temps ce qui mène à penser que l'écoulement est instable. Cette interprétation en terme d'instabilité d'écoulement fut inspirée des résultats de Reynolds sur les instabilités d'écoulement dans des tuyaux cylindriques qui, à ce moment là, étaient assez bien connues. La figure 3.2(b) montre quant à elle la courbe d'écoulement pour une suspension de billes de verre creuses dans de l'eau obtenue avec un rhéomètre moderne (TA Instrument ARG2) pour laquelle seul le cylindre intérieur est mis en rotation. La transition d'un écoulement laminaire vers un écoulement instable est cette fois-ci beaucoup plus franche avec une taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_c^i$  bien mieux défini que dans le cas précédent où seul le cylindre extérieur tourne.

Mallock a également montré à partir d'un démarrage en écoulement que le couple atteint sa valeur limite seulement après un temps caractéristique  $\tau$  qui est indépendant de l'amplitude de la marche en cisaillement imposée pour des taux de cisaillement  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$  comme le montre l'insert de la figure 3.2(a). Ce temps caractéristique des propriétés intrinsèques du fluide est lié à la diffusion de la couche limite du cylindre en rotation vers le cylindre fixe comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe 3.1 et décrit sur la figure 3.1. C'est le temps de dissipation visqueuse défini comme :

$$\tau = d^2/\nu \quad (3.1)$$

Le nombre de Reynolds peut alors s'écrire en fonction de  $\tau$  de la manière suivante :

$$\overline{Re} = \tau \overline{\dot{\gamma}} \quad (3.2)$$

On retrouve également ici l'importance du nombre de Deborah :  $De = \tau/t_{obs}$ . En effet pour  $t_{obs} < \tau$  l'écoulement n'est pas encore établi, on observe alors la diffusion de la quantité de mouvement à travers des profils de vitesse courbés tandis que pour  $t_{obs} > \tau$  l'état stationnaire est atteint.

Dans les expériences de Couette et Mallock, le taux de rotation est le paramètre de contrôle et le couple était mesuré. Les rhéomètres modernes nous permettent désormais d'imposer soit le taux de rotation (ou le taux de cisaillement) soit le couple (ou contrainte de cisaillement). Pour les écoulements simples, imposer l'un ou l'autre ne change pas la phénoménologie mais nous verrons par la suite que les instabilités et leurs motifs d'écoulements peuvent être sensibles au choix du paramètre de contrôle. Nous allons désormais réduire le problème au cas où seul le cylindre intérieur tourne, et nous concentrer sur le choix du paramètre de contrôle pour décrire la transition de l'écoulement laminaire vers l'écoulement instable.

### 3.2.2 L'instabilité linéaire de Taylor dans le cas où le cylindre extérieur est fixe

Comme nous l'avons mentionné précédemment, les instabilités d'écoulement dans des tuyaux cylindriques ont été mises en évidence par Reynolds mais ce dernier ne réussit pas à prédire correctement le seuil. De nos jours, on sait que cela est dû à la non linéarité intrinsèque de la transition et que ce problème est difficile et reste un sujet de recherche intense [Eckhardt et al., 2007; Mullin, 2011]. De même l'écoulement entre deux plaques parallèles en translation est aussi un problème compliqué et présente également une instabilité non-linéaire [Grossmann, 2000]. Taylor s'intéressa alors au problème dans une cellule de Taylor-Couette [Taylor, 1923a], car celle-ci possède deux avantages par rapport au tuyau : dans la limite des petits entrefers, c'est-à-dire si  $d/R_i \ll 1$ , le taux de cisaillement et par conséquent le nombre de Reynolds sont constants sur l'ensemble de l'entrefers  $\dot{\gamma} = |\Omega_i - \Omega_o| R_i/d$ ; et les lignes de courant sont courbées. Il montra, à la fois théoriquement et expérimentalement, que l'écoulement de Couette de base pouvait devenir instable que ce soit en co-rotation ou contra-rotation comme le montre la figure 3.3(c) [Taylor, 1923a]. Expérimentalement, Taylor fut le premier à visualiser les écoulements en injectant de l'encre à partir de six petits trous placés au niveau du cylindre intérieur. Ainsi il put montrer qu'au-delà du seuil de

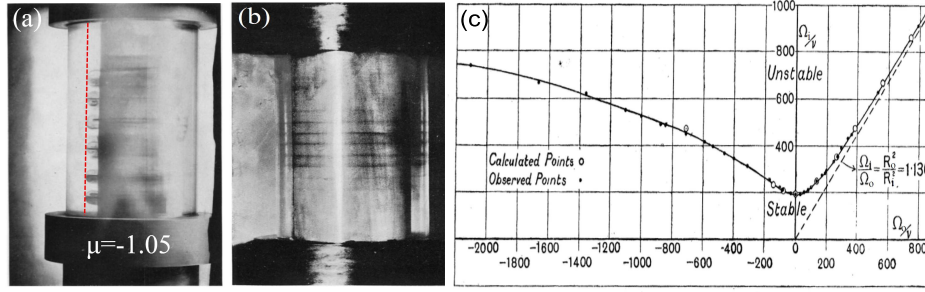


FIGURE 3.3 – **Instabilité de Taylor-Couette.** (a) En contra-rotation : observations de rouleaux confinés dans l'entrefer effectif (voir annexe A) pour  $\mu = \Omega_o/\Omega_i = -1,05 < 0$ . (b) Dans le cas où seul le cylindre intérieur tourne : observations de rouleaux stationnaires sur tout l'entrefer. (a) et (b) sont des visualisations d'écoulement faites par Taylor avec de l'encre. (c) Comparaison entre les vitesses observées (points) et calculées (lignes) pour lesquelles la première instabilité apparaît ( $R_i = 3,80$  cm,  $R_o = 4,035$  cm et  $H = 90$  cm). La ligne en pointillés représente le critère de Rayleigh et sera discutée dans l'annexe A.

l'instabilité, l'écoulement de base est perturbé par l'apparition de rouleaux contra-rotatifs qu'on appelle désormais « rouleaux de Taylor ». Cette première instabilité est nommée désormais : *Taylor Vortex Flow* (TVF). L'encre servant de traceur, il a pu imager ces rouleaux comme on peut le voir sur la figure 3.3(a) et (b). Grâce à son analyse théorique, Taylor a été le pionnier de l'analyse de stabilité linéaire et aujourd'hui encore elle est grandement utilisée. À la différence des écoulements dans des tuyaux ou entre deux plaques parallèles, des perturbations même infinitésimales peuvent conduire à une instabilité du moment qu'on se trouve au-delà du seuil. Cela veut dire que l'instabilité est indépendante de l'amplitude de la perturbation.

Dans le cas où seul le cylindre intérieur tourne (le cylindre extérieur étant fixe), Prandtl fut alors le premier à noter que les résultats théoriques de Taylor dans l'approximation des petits entrefers pouvaient se mettre approximativement sous la forme [Taylor, 1923a] :

$$\left( \frac{\Omega_i R_i d}{\nu} \sqrt{\frac{d}{R_i}} \right)_c \simeq 41,2, \quad (3.3)$$

De nos jours, le nombre sans dimension entre parenthèses est appelé le nombre de Taylor et est noté :

$$Ta = \sqrt{\Lambda \overline{Re}}, \quad (3.4)$$

où  $\Lambda$  est la courbure adimensionnée des lignes de courant qui peut s'écrire  $\Lambda = d/R_i$  dans la limite des petits entrefers, et  $\overline{Re}$  est le nombre de Reynolds obtenu à partir du taux de cisaillement global  $\bar{\gamma}$ . Ainsi, dans le cas simple où seul le cylindre intérieur tourne et où le cylindre extérieur est fixe, le critère pour obtenir un écoulement instable est  $Ta > Ta_c$ .

Notons qu'un critère similaire existe pour les instabilités purement élastiques comme l'a montré McKinley et al. [1996]. Dans ce cas, le temps de dissipation visqueuse  $\tau$  est remplacé par le temps de relaxation élastique  $\tau_s$  du fluide et le nombre de Reynolds est quant à lui remplacé par le nombre de Weissenberg  $Wi$  pour construire un nombre de Taylor élastique. Nous y reviendrons en particulier dans le chapitre 5.

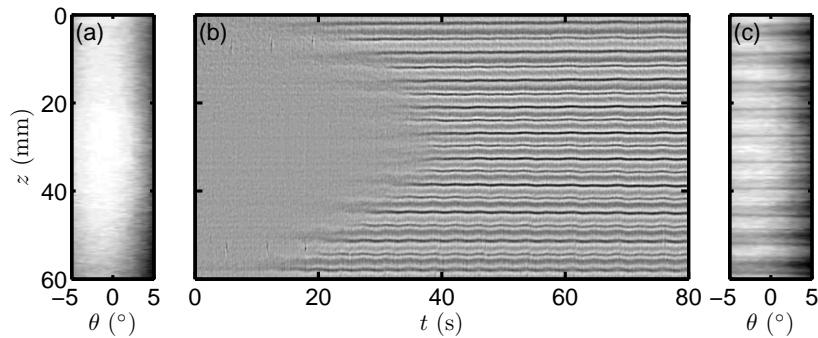


FIGURE 3.4 – Visualisation directe de la transition d'un écoulement laminaire vers un écoulement avec rouleaux de Taylor pour une suspension newtonienne de plaquettes de Kalliroscope dans de l'eau (1 % en masse) en appliquant une rampe en taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 37$  à  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$ . (a) et (c) Images du film enregistré par la webcam au début ( $t = 0 \text{ s}$ ) et à la fin ( $t = 80 \text{ s}$ ) de l'acquisition. (b) Diagramme spatio-temporel de l'écoulement illustrant la formation des rouleaux à partir des bords (haut et bas de la cellule de Taylor-Couette) ainsi que la prédominance de l'écoulement centrifuge sur l'écoulement centripète démontrant le caractère inertiel de l'instabilité de Taylor-Couette (voir texte et vidéo supplémentaire 5).

Dans un premier temps, les rouleaux de Taylor ont pu être visualisés directement en rajoutant dans de l'eau du Kalliroscope en faible quantité (1 % en masse). Sur la figure 3.4 nous pouvons observer cette instabilité grâce à une webcam standard et un stator transparent. Les zones sombres (en noir) indiquent un alignement des plaquettes selon  $r$  et correspondent donc à des zones où la composante radiale de la vitesse domine la composante verticale. Inversement, les zones claires (en gris/blanc) indiquent un alignement des plaquettes selon  $z$  et correspondent donc à des zones où la composante verticale de la vitesse domine la composante radiale. Notons que les plaquettes de Kalliroscope s'orientent suivant l'écoulement mais ne nous donnent que la direction et non le sens. Cependant, étant donné que l'instabilité de Taylor-Couette est une instabilité inertielle, nous savons que l'écoulement centrifuge est plus important que l'écoulement centripète. Ainsi sur le diagramme spatio-temporel [Fig.3.4(b)], nous pouvons différencier les zones d'écoulement centrifuge : zones noires étroites où la vitesse radiale est grande en valeur absolue, des zones où l'écoulement est centripète : zones noires plus larges où la vitesse radiale est plus faible en valeur absolue.

Nous pouvons également observer ces rouleaux avec notre technique d'imagerie ultrasonore et avant d'étudier des systèmes plus complexes, nous avons cherché dans un premier temps à retrouver le nombre de Taylor critique dans une suspension de billes de verre dans de l'eau. Comme nous l'avons vu sur la figure 3.1, pour un écoulement laminaire le champ de vitesse reste purement orthoradial et les cartes du champ de vitesse sont essentiellement invariantes suivant la direction verticale  $z$ . Cette situation change radicalement lorsqu'on impose un taux de cisaillement plus important. La symétrie selon  $z$  est brisée par l'apparition de rouleaux contra-rotatifs marquée par des ondulations verticales sur le champ de vitesse. La figure 3.5(a) illustre différentes cartes de la vitesse à différents temps pour un démarrage d'écoulement en cisaillement de  $\dot{\gamma} = 80 \text{ s}^{-1}$ . Dans les premiers instants, on remarque que l'écoulement reste inva-

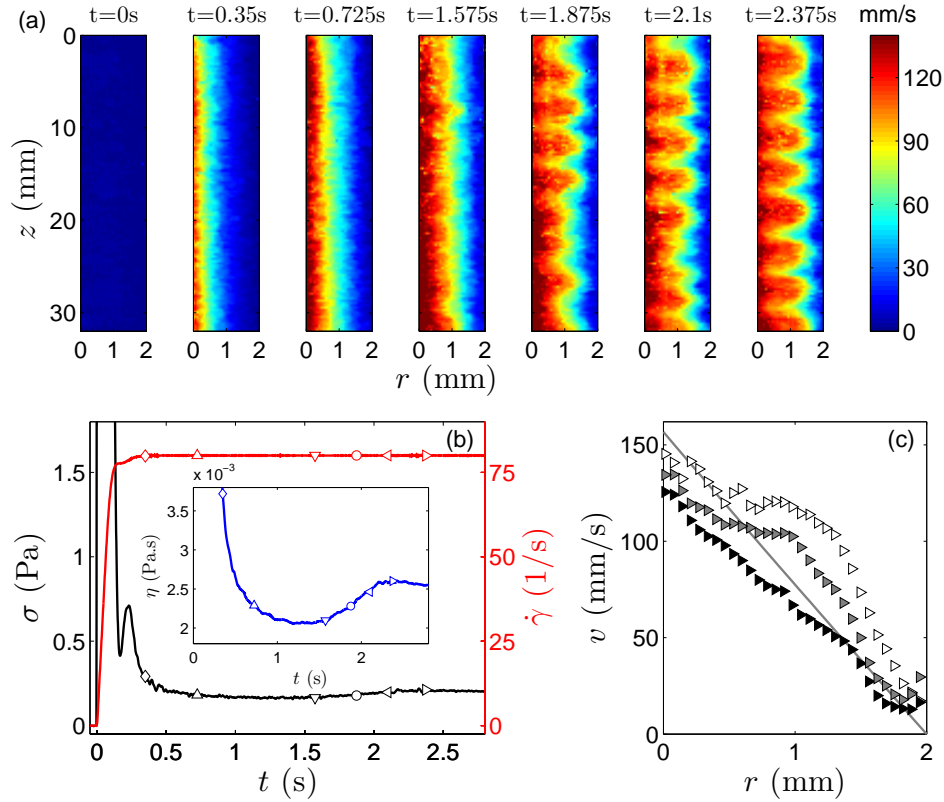


FIGURE 3.5 – Transition vers un écoulement avec rouleaux d'une suspension Newtonienne de billes de verre creuses dans de l'eau à une concentration de 1% en masse en appliquant un saut en taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 0$  à  $\dot{\gamma} = 80 \text{ s}^{-1}$ . (a) Cartographies du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués en haut de chaque image. Chaque image correspond à une moyenne sur 50 tirs envoyés toutes les 0,5 ms (voir la vidéo supplémentaire 6). (b) Superposition du signal de réponse en contrainte  $\sigma(t)$  enregistré simultanément et synchronisé en temps avec les images de vitesse avec le signal instantané du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre. Les symboles indiquent les temps correspondants aux images de vitesse montrées en (a). En insert : évolution de la viscosité apparente  $\eta(t) = \sigma(t)/\dot{\gamma}(t)$ . (c) Profils de vitesse à  $t = 2,375$  s et pour  $z = 19,25$  mm (symboles blancs, écoulement centrifuge),  $z = 20,5$  mm (symboles gris, entre l'écoulement centrifuge et centripète) et  $z = 21,5$  mm (symboles noirs, écoulement centripète). La ligne gris montre le profil de vitesse linéaire attendu pour une fluide Newtonien dans le régime laminaire à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 80 \text{ s}^{-1}$  [Eq. (2.11)]. ( $R_i = 48$  mm,  $R_o = 50$  mm)

riant suivant  $z$  et ressemble à l'écoulement de la figure 3.1. Cependant, pour  $t \gtrsim 1.5$  s, cette symétrie est progressivement brisée avec l'émergence d'ondulations bien définies le long de  $z$ . Le début de la formation des rouleaux peut être aussi repéré sur les données rhéologiques de la figure 3.5(b). En effet, la transition de Taylor depuis un écoulement purement orthoradial vers un écoulement avec rouleaux implique une résistance additionnelle de l'écoulement. Ceci se caractérise par une augmentation de la viscosité apparente  $\eta(t) = \sigma(t)/\dot{\gamma}(t)$  enregistré par le rhéomètre (voir l'insert de la figure 3.5(b) pour  $1,5 \lesssim t \lesssim 2,5$  s). En d'autres termes, les rouleaux dissipent l'énergie fournie par le rhéomètre. Par conséquent, pour conserver un taux de cisaillement

constant, le rhéomètre doit augmenter sa contrainte et donc la viscosité apparente de la solution augmente. On explique ainsi le rhéo-épaississement apparent des courbes d'écoulements de la figure 3.2. Notons que la mise en place des rouleaux à ce taux de cisaillement se fait très rapidement (inférieure à 2 s) et qu'ici la grande résolution temporelle de la machine est nécessaire pour résoudre cette transition. Enfin la figure 3.5(c) illustre trois exemples de profils de vitesse à  $t = 2,375$  s à trois hauteurs différentes. Les symboles blancs (respectivement noirs) correspondent à une zone d'écoulement centrifuge (respectivement centripète) où la composante  $v_r$ , positive (respectivement négative) s'ajoute (respectivement se soustrait) à la composante  $v_\theta$ , ce qui implique une vitesse  $v$  mesurée plus grande (respectivement faible) que le profil de vitesse attendu pour un fluide newtonien dans le régime laminaire à ce taux de cisaillement. Pour finir, grâce à la vision bi-dimensionnelle de notre technique d'imagerie ultrasonore qui nous permet de visualiser l'écoulement sur plus de 30 mm dans la direction verticale, on peut observer plus de 7 longueurs d'onde sur les ondulations du champ de vitesse. Une ondulation correspond à une paire de rouleaux contra-rotatifs (voir Fig.3.8). Ceci nous permet de remonter précisément à la valeur de  $\lambda = 4,1 \pm 0,1$  mm ce qui est en accord avec la donnée de Taylor :  $\lambda_c \simeq 2d = 4$  mm. Si on prend en compte la taille de la cellule de Taylor-Couette ( $R_i = 48$  mm et  $R_o = 50$  mm), ce taux de cisaillement ( $\dot{\gamma} = 80$  s<sup>-1</sup>) correspond à un nombre de Taylor  $Ta = 71$ . Comme le résume la figure 3.12(b) un peu plus loin, plusieurs instabilités apparaissent successivement dans une cellule de Taylor-Couette pour un cylindre extérieur fixe lorsqu'on augmente le nombre de Taylor. Un nombre de Taylor de  $46 < Ta = 71 \lesssim 400$  correspond à une instabilité secondaire nommée *Wavy Vortex Flow* (WVF) où les rouleaux de Taylor deviennent instables et oscillent dans l'espace et dans le temps. La figure 3.6 et la vidéo supplémentaire 7 montrent un état stationnaire d'un écoulement de rouleaux oscillants à  $Ta = 71$ . Le diagramme spatio-temporel [Fig.3.6(b)] illustre les oscillations de la vitesse dans le temps qui sont synchronisées avec les fluctuations de la contrainte mesurée par le rhéomètre [Fig.3.6(d)]. Une telle transition entre des rouleaux de Taylor stables vers des rouleaux qui oscillent dans l'espace et dans le temps peut être résolue également par visualisation directe de l'écoulement. La figure 3.7 illustre cette transition pour une solution newtonienne constituée d'eau et de Kalliroscope lorsqu'on augmente progressivement le taux de cisaillement de 40 à 45 s<sup>-1</sup>. On observe alors que la déstabilisation des rouleaux se fait de manière intermittente dans le temps à faibles taux de cisaillement avant que l'instabilité WVF ne s'établisse complètement à haut taux de cisaillement (voir aussi la vidéo supplémentaire 8).

Revenons plus en détail à présent sur la transition (CF  $\rightarrow$  TVF). Pour caractériser cette première instabilité de Taylor, nous avons effectué des mises en écoulement en appliquant des marches en taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}$ . Pour chaque expérience nous avons calculé  $\delta v$  défini de la manière suivante :

$$\delta v = \frac{\langle |v - v_{\text{lam}}| \rangle}{\Omega R_i}, \quad (3.5)$$

où  $v_{\text{lam}}$  est l'écoulement de Couette purement azimuthal,  $v$  est le champ de vitesse mesurée et la moyenne est prise sur les directions verticales  $z$  et radiale  $r$ .  $\delta v$  représente donc la déviation à l'écoulement de base, adimensionnée par la vitesse au rotor. Un zoom d'une cartographie de  $\delta v$  non moyennée dans l'espace est montré sur la figure 3.8(c)



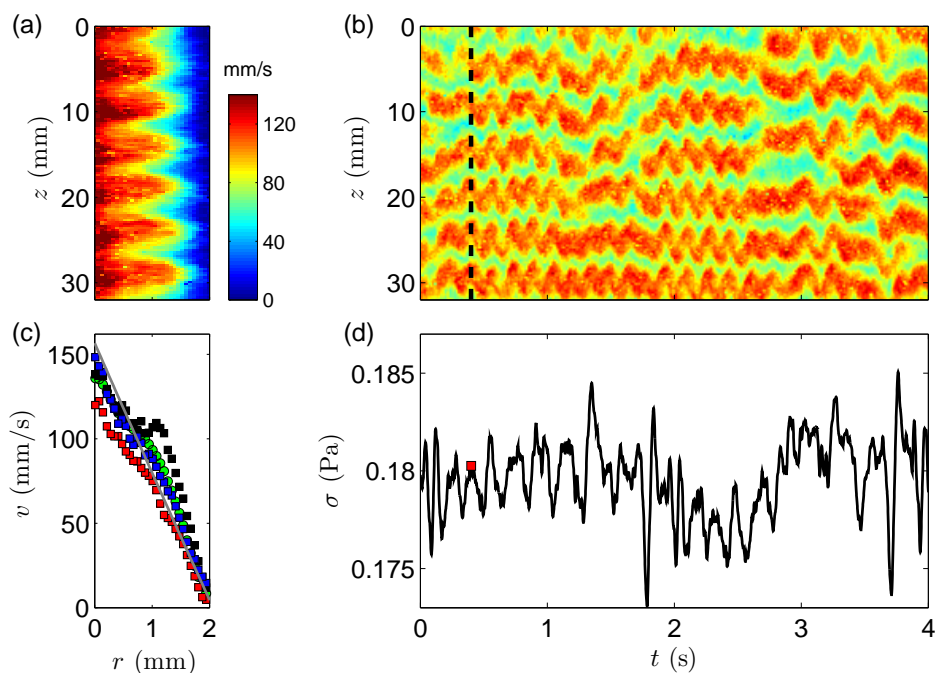


FIGURE 3.6 – Instabilité de Taylor Couette secondaire : Wavy Vortex Flow (WVF). (a) Carte du champ des vitesses à  $t = 0,4$  s. (b) Diagramme spatio-temporel d'un profil de vitesse à  $r_0 = 1,0$  mm. (c) Profils de vitesses à  $z = 19,2$  (■),  $z = 20,4$  (■), et  $z = 21,6$  mm (■) correspondant à une bosse, à une zone entre une bosse et un creux, et à un creux de (a). (●) montre le profil de vitesse moyenné sur toute la hauteur. Cette figure est à mettre en relation avec la figure 3.8(c) représentant la déviation à l'écoulement de base. (d) Évolution temporelle de la contrainte de cisaillement dont les fluctuations sont corrélées avec les oscillations verticales de (b). (Suspension de billes de verre dans de l'eau (1% en masse),  $R_i = 48$  mm,  $R_o = 50$  mm,  $\dot{\gamma} = 80$  s $^{-1}$ ).

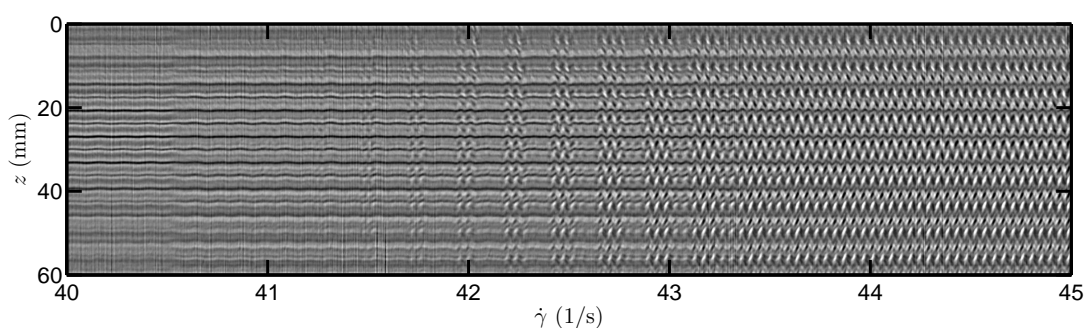


FIGURE 3.7 – Visualisation directe de la transition d'un écoulement de Taylor Vortex Flow (TVF) vers un écoulement de Wavy Vortex Flow (WVF) pour une suspension newtonienne de plaquettes de Kalliroscope dans de l'eau (1 % en masse) en appliquant une rampe en taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 40$  à  $\dot{\gamma} = 45$  s $^{-1}$ . Diagramme spatio-temporel de l'écoulement d'une solution de Kalliroscope dans de l'eau illustrant la transition de rouleaux de Taylor stables à des rouleaux qui oscillent dans l'espace et dans le temps caractéristiques de l'instabilité de Taylor secondaire. ( $R_i = 23$  mm,  $R_o = 25$  mm)

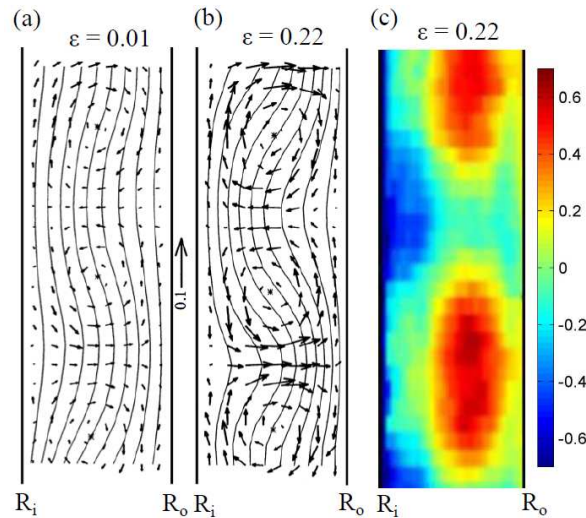


FIGURE 3.8 – **Rouleaux contra-rotatifs et longueur d’onde de l’instabilité de Taylor-Couette.** Vecteurs vitesses dans le plan  $(r, z)$  et lignes d’isovitesse azimutale obtenus par PIV dans l’entrefer dans le cas où seul le cylindre intérieur est en rotation ( $\Omega_o = 0$ ) avec  $\nu = 3.10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ ,  $\Phi_r = R_i/R_o = 0,83$  et un rapport d’aspect  $\Upsilon = H/d = 47,7$  pour  $\epsilon = 0,01$  (a) et  $\epsilon = 0,22$  (b) ( $\epsilon = (Ta - Ta_c)/Ta_c$  étant l’écart relatif au seuil). L’échelle des vecteurs vitesses est identique dans les deux figures. En dessous de la transition [(a),  $\epsilon \ll 1$ ] les rouleaux sont symétriques et ne déforment pas de manière significative l’écoulement principal. Pour des plus grands  $\epsilon$  (b), l’écoulement centrifuge devient plus important que l’écoulement centripète et l’écoulement principal est déformé (figure adaptée de Wereley et Lueptow [1998]). (c) Visualisation, grâce à notre technique d’imagerie ultrasonore, d’un agrandissement de la carte de  $\delta v$  obtenue en soustrayant l’écoulement de base à l’écoulement azimutal principal pour  $\epsilon = 0,22$ . Les zones rouges (respectivement bleues) correspondent à des zones d’écoulement centrifuge (respectivement centripète) qui vont plus vite (respectivement moins vite) que l’écoulement de base de Couette. ( $R_i = 23 \text{ mm}$ ,  $R_o = 25 \text{ mm}$ ).

pour un nombre de Taylor  $Ta = 50$  soit un écart au seuil  $\epsilon = (Ta - Ta_c)/Ta_c = 0,22$ . On remarque sur cette image la présence de zones rouges (respectivement bleues) correspondant à des zones d’écoulement centrifuge (respectivement centripète) qui vont plus vite (respectivement moins vite) que l’écoulement de base de Couette. En moyennant sur tout l’espace ( $z$  et  $r$ ), on obtient un point de la figure 3.9 qui représente le diagramme de bifurcation de l’instabilité de TVF. Pour  $Ta < Ta_c$ ,  $\delta v$  est nulle car l’écoulement reste laminaire, lorsque  $Ta > Ta_c$ , l’apparition des rouleaux déforment le profil de vitesse laminaire et  $\delta v$  augmente. Cette croissance est en  $\delta v \sim (Ta - Ta_c)^{1/2}$  ce qui est caractéristique d’une bifurcation supercritique. Ici on trouve  $Ta_c \simeq 42,7$  qui correspond bien à la valeur trouvée par Taylor et renormalisée par Prandtl [Taylor, 1923b; Donnelly et Fultz, 1960]. De plus, pour  $Ta \gtrsim 50$  les fluctuations autour de cette loi sont beaucoup plus grandes et pour  $Ta \sim 60$  les données expérimentales s’éloignent de la loi  $\delta v \sim (Ta - Ta_c)^{1/2}$ . Deux raisons principales peuvent expliquer cet écart. Premièrement, cette loi obtenue par une analyse de stabilité linéaire n’est vraie que proche du seuil  $Ta_c = 41$ . De plus pour des nombres de Taylor  $Ta > 46$ , les rouleaux ne sont plus stables et oscillent, nous sommes alors dans le domaine des Wavy Vortex Flow ( $46 < Ta \lesssim 400$ ) (Fig.3.12) dans lequel l’instabilité secondaire se superpose à

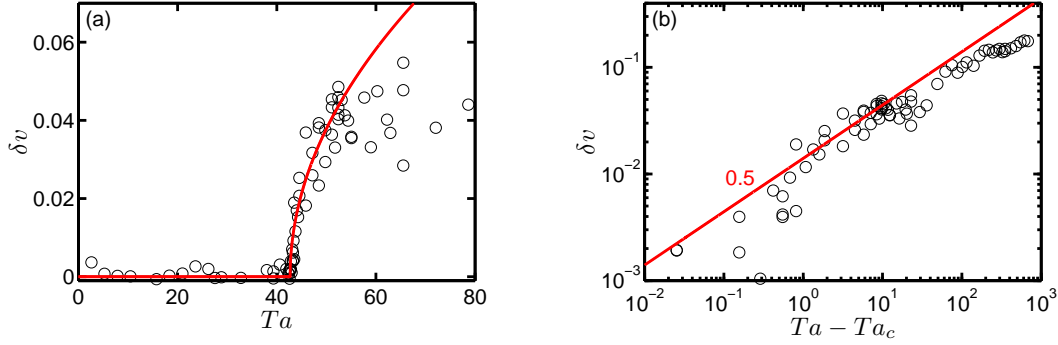


FIGURE 3.9 – Bifurcation supercritique entre l'écoulement de Couette (CF) et l'écoulement des rouleaux de Taylor (TVF). Le paramètre d'ordre est la déviation adimensionnée de l'écoulement de base  $\delta v = \frac{\langle |v - v_{\text{lam}}| \rangle}{\Omega R_i}$ , où  $v_{\text{lam}}$  est l'écoulement de Couette purement azimutal,  $v$  est le champ de vitesse mesuré et la moyenne est prise sur les directions verticales  $z$  et radiale  $r$ . Un zoom d'une carte non moyennée de cette déviation est représenté sur la figure 3.8. On considère ici le nombre de Taylor purement inertiel  $Ta(Re) = \Lambda^{1/2} Re$ . La loi  $\delta v \sim (Ta - Ta_c)^{1/2}$  caractéristique d'une bifurcation supercritique est représentée par la ligne rouge. On trouve ici  $Ta_c \simeq 42,7$  en accord avec  $Ta_c \simeq 41,2$  donné par Prandtl [Taylor, 1923b; Donnelly et Fultz, 1960].

l'instabilité de TVF ce qui explique cette déviation.

Enfin, intéressons nous à la forme de ces rouleaux de Taylor. Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 2, la vitesse  $v$  que nous mesurons possède deux composantes : une composante orthoradiale  $v_\theta$  et une composante radiale  $v_r$  du fait d'un angle d'incidence non nul (voir la figure 3.10). Nous pouvons retrouver ces deux composantes horizontale de l'écoulement en combinant les vitesses  $v^+$  et  $v^-$  obtenues par mesure ultrasonore d'un état stationnaire au même taux de cisaillement mais avec des sens de rotations différents :  $+\dot{\gamma}$  et  $-\dot{\gamma}$ . On trouve alors :

$$v_{y^+} = v_\theta \sin \theta - v_r \cos \theta, \quad (3.6)$$

et

$$v_{y^-} = -v_\theta \sin \theta - v_r \cos \theta, \quad (3.7)$$

Comme  $v = v_y / \sin \theta$  les équations 3.6 et 3.7 conduisent à :

$$v^+ = v_\theta - v_r / \tan \theta, \quad (3.8)$$

et

$$v^- = -v_\theta - v_r / \tan \theta, \quad (3.9)$$

Ainsi on en déduit  $v_\theta$  et  $v_r$  en combinant les équations (3.8) et (3.9) soit :

$$v_\theta = \frac{v^+ - v^-}{2}, \quad (3.10)$$

et

$$v_r = -\frac{\tan \theta}{2}(v^+ + v^-). \quad (3.11)$$

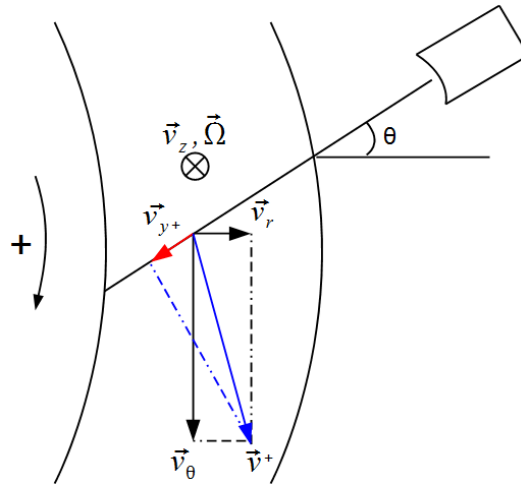


FIGURE 3.10 – Schéma montrant la relation entre  $v_{y+}$  et  $v_{\theta}$  et  $v_r$ . On trouve :  $v_{\theta} = \frac{1}{2}(v^+ - v^-)$  et  $v_r = -\frac{\tan\theta}{2}(v^+ + v^-)$ .

Cette combinaison nous permet de retrouver la carte du champ de vitesse radiale [Fig.3.11(d)] et orthoradiale [Fig.3.11(c)] pour des écoulements avec rouleaux par exemple. On vérifie ainsi qu'une amplitude maximale positive (respectivement minimale négative) dans l'oscillation de  $v_{\theta}$  correspond bien à une vitesse radiale  $v_r$  positive (respectivement négative) et donc à un écoulement centrifuge (respectivement centripète). Grâce à cette combinaison, nous avons pu également résoudre un problème rencontré à plus hauts taux de cisaillement. Pour  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ , la carte du champ de vitesse mesuré dans le sens positif  $v^+$  montre des oscillations verticales déformées que nous appelons « queues de pie » [voir la figure 3.11(B)(a)] que nous n'observons pas sur la carte du champ de vitesse mesuré dans le sens négatif  $v^-$ . Ceci est dû à la composante radiale qui s'ajoute ou se soustrait suivant qu'on tourne dans le sens positif ou le sens négatif [voir les équations (3.8) et (3.9)]. En revenant aux champs de vitesse  $v_{\theta}$  et  $v_r$ , on retrouve des cartes similaires à celles obtenues pour un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$  plus faible.

Comme nous l'avons mentionné auparavant, les instabilités Taylor Vortex Flow (TVF) et Wavy Vortex Flow (WVF) présentées précédemment ne sont qu'une petite partie de l'ensemble des instabilités que l'on peut obtenir dans une cellule de Taylor-Couette et qui sont résumées sur la figure 3.12(a). Notre dispositif expérimental ne permet que de faire tourner le cylindre intérieur donc la zone observable dans notre cas se limite à la ligne rouge de la figure 3.12(a). En augmentant le taux de cisaillement et donc le nombre de Taylor inertiel, on franchit différents seuils d'instabilité. L'écoulement de Couette (CF pour Couette Flow) est l'écoulement de base observé en régime laminaire. Taylor Vortex Flow (TVF) est la première instabilité où apparaissent des rouleaux stables dans le temps avec une longueur d'onde bien définie. Wavy Vortex Flow (WVF) est la seconde instabilité : les rouleaux deviennent instables et oscillent dans le temps et l'espace. Modulated Waves Vortices (MWW) est la troisième instabilité : les rouleaux oscillent et sont décalés selon  $z$ . Wavy Turbulent Vortices (WTV) est la quatrième instabilité : on arrive à discerner des oscillations dans les rouleaux mais ceux-ci deviennent turbulents. Enfin Turbulent Taylor Vortices (TTV) est

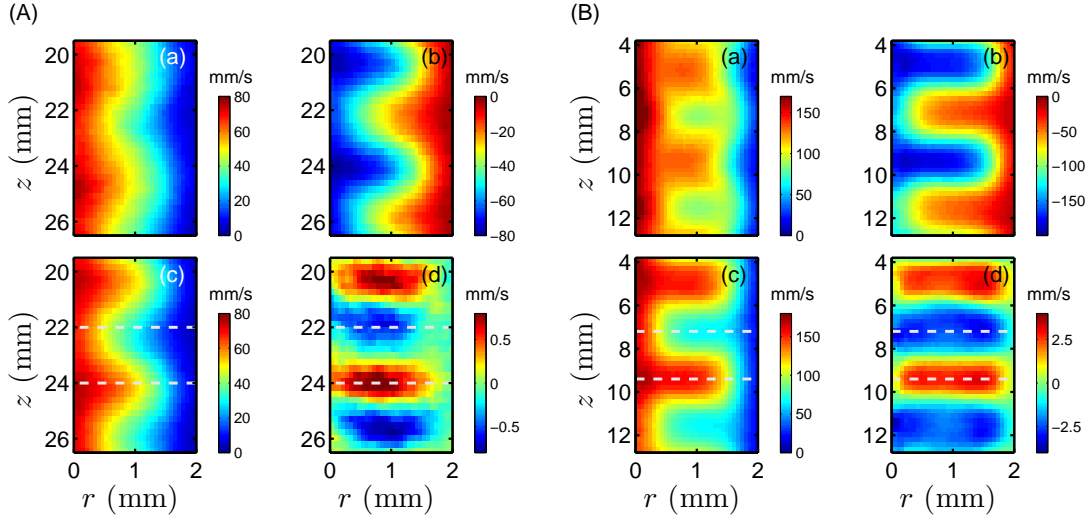


FIGURE 3.11 – **Analyse des rouleaux de Taylor inertiels (TVF) dans de l'eau.** (a) [respectivement (b)] représente une carte de la vitesse  $\langle v_+(r, z, t) \rangle_t$  [respectivement  $\langle v_-(r, z, t) \rangle_t$ ] zoomée sur une partie de la hauteur  $z$  et moyennée sur 1000 tirs consécutifs pour un taux de cisaillement imposé par le cylindre intérieur de (A)  $\dot{\gamma} = +40 \text{ s}^{-1}$  [respectivement  $\dot{\gamma} = -40 \text{ s}^{-1}$ ] ainsi qu'une fréquence de répétition des tirs  $f_{PRF} = 2 \text{ kHz}$  et de (B)  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$  et  $f_{PRF} = 5 \text{ kHz}$  dans l'état stationnaire. (c) [respectivement (d)] représente la carte du champ de vitesse azimutal  $v_\theta(r, z, t)$  [respectivement radial  $v_r(r, z, t)$ ] calculé à partir de (a) et (b) comme expliqué dans le texte.

la cinquième instabilité obtenue pour des nombres de Taylor  $Ta \simeq 1000$  : le motif d'ondulation est perdu et l'écoulement présente des rouleaux de Taylor turbulents nommés rouleaux fantômes séparés d'une longueur d'onde axiale similaire aux rouleaux de Taylor de l'instabilité TVF. La disparition de cette longueur d'onde n'intervient que pour des nombres de Taylor supérieur à 40000 où la turbulence ne présente plus de motifs de rouleaux. Pour détruire cette structure spatiale de rouleaux, il faut augmenter le taux de cisaillement jusqu'à plus de 40000 fois le taux de cisaillement seuil. La figure 3.12(b) résume ces différentes instabilités en montrant les motifs d'écoulement observés grâce à une cellule de Couette transparente et des réflecteurs anisotropes.

Lorsque le cylindre intérieur et le cylindre extérieur tournent que ce soit en co-rotation ou en contra-rotation, les seuils des instabilités sont modifiés et de nouveaux motifs d'écoulement sont observés. Le critère de Taylor seul ne suffit plus et pour comprendre entièrement le diagramme de la figure 3.12, il faut prendre en compte d'autres critères comme celui introduit par Rayleigh et qui est résumé dans l'annexe A. Dans notre cas, où seul le cylindre intérieur tourne, nous pouvons nous contenter du critère de Taylor.

Après avoir calibré notre technique d'imagerie ultrasonore sur un fluide newtonien bien connu et retrouvé un certain nombre de résultats déjà établis, tournons-nous maintenant vers des fluides aux comportements plus complexes tels que les solutions de polymères et les solutions micellaires qu'on qualifie de fluides viscoélastiques.

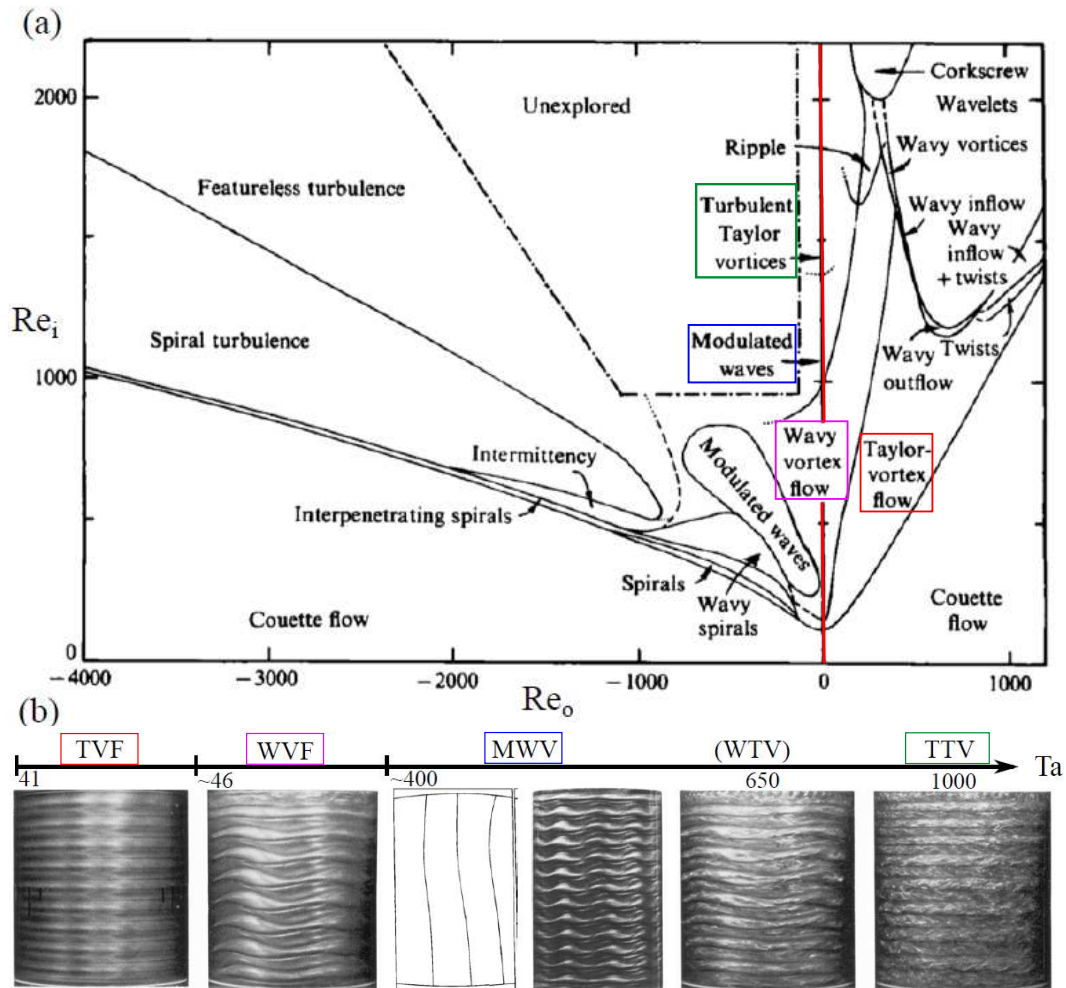


FIGURE 3.12 – **Résumé des instabilités observées dans une cellule de Taylor-Couette.** (a) Diagramme de phase ( $Re_o, Re_i$ ) pour une cellule de Taylor-Couette en petit entrefer ( $\Phi_r = R_i/R_o = 0,88$  et  $\Upsilon = H/d = 0,033$ ) illustrant la richesse des instabilités observées dans de l'eau en co- et contra-rotation. Notre cas se limite à la ligne rouge où le cylindre extérieur est fixe. (b) Route vers la turbulence pour  $\Omega_o = 0$  en petit entrefer ( $\Lambda \ll 1$  c'est-à-dire  $\Phi_r = R_i/R_o \sim 1$ ) comme l'a suggéré Fenstermacher et al. [1979] ( $\Phi_r = R_i/R_o = 0,877$  et  $\Upsilon = H/d = 20$ ). TVF (Taylor Vortex Flow), WVF (Wavy Vortex Flow), MWV (Modulated Wave Vortices), WTV (Wavy Turbulent Vortex) et TTV (Turbulent Taylor Vortices) sont les instabilités successives rencontrées lorsqu'on augmente le nombre de Taylor. Les motifs d'écoulement sont observés grâce à un cylindre extérieur transparent en utilisant des traceurs réfléchissants anisotropes.



# Chapitre 4

## Un fluide viscoélastique : les solutions de polymères

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Présentation</b>	<b>72</b>
<b>4.2</b>	<b>Préparation de la solution de PAAM</b>	<b>73</b>
<b>4.3</b>	<b>Rhéologie du PAAM</b>	<b>74</b>
4.3.1	Rhéologie linéaire et temps de relaxation viscoélastique	74
4.3.2	Courbe d'écoulement et transition vers la turbulence élastique	75
<b>4.4</b>	<b>Imagerie d'écoulement du PAAM</b>	<b>75</b>
4.4.1	Visualisation directe	75
4.4.2	Imagerie ultrasonore des diwhirls du PAAM	76
4.4.3	Route vers la turbulence	81
4.4.4	Vers une étude statistique de la turbulence	85

---



## 4.1 Présentation

Nous avons vu que dans un fluide simple newtonien tel que l'eau, les écoulements ont tendance à devenir instables et éventuellement turbulents à cause de l'inertie lorsqu'on augmente le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  ou autrement dit le nombre de Reynolds  $Re = \tau\dot{\gamma}$ . Dans ce cas, il n'y a qu'un seul temps caractéristique à prendre en compte. Il s'agit du temps de dissipation ou de diffusion visqueuse :

$$\tau = \rho d^2 / \eta = d^2 / \nu \quad (4.1)$$

où  $\eta$  est la viscosité dynamique du fluide,  $\nu$  la viscosité cinématique,  $\rho$  sa densité et  $d$  la taille caractéristique dans la direction du gradient de vitesse (c'est-à-dire la taille de l'entrefer dans le cas d'une cellule de Taylor-Couette). Il a été décrit également que l'écoulement devient linéairement instable lorsque le nombre de Taylor  $Ta = \Lambda^{1/2} Re$  excède une valeur critique  $Ta_c$  où  $\Lambda$  correspond à la courbure adimensionnée des lignes de courant. Dans le cas d'une géométrie de Couette où seul le cylindre intérieur de rayon  $R_i$  est en rotation à la vitesse angulaire  $\Omega$  et dans la limite des petits entrefers (c'est-à-dire  $d/R_i \ll 1$ ), on prend  $\dot{\gamma} \simeq \Omega R_i / d$  pour calculer  $Re$  et  $\Lambda$  est simplement donné par  $\Lambda = d/R_i$ . Dans ce cas, la valeur du seuil est  $Ta_c \simeq 41$  [Taylor, 1923b; Donnelly et Fultz, 1960].

Alors que le cas d'un fluide newtonien, incompressible et isotherme est désormais bien compris, la situation est bien plus confuse lorsque des échelles de temps différentes du temps inertiel  $\tau$  interviennent. Par exemple les effets de la compressibilité, d'un champ magnétique ou encore de la température ont été étudiés [Schmid et Henningson, 2001; Chandrasekhar, 1961]. Dans les parties 4 et 5, nous allons nous intéresser à des fluides viscoélastiques où la relaxation de la contrainte peut apporter une échelle de temps supplémentaire  $\tau_s$ .<sup>1</sup> L'archétype du fluide viscoélastique est la solution de polymère.

Dans une solution de polymères, le temps de relaxation viscoélastique  $\tau_s$  dépend du degré d'enchevêtrement entre les chaînes [de Gennes, 1979]. Cela peut être un temps de Rouse, de Zimm ou encore de reptation. De la même manière que pour un fluide newtonien, ces solutions viscoélastiques peuvent conduire à des instabilités et développer de la turbulence. Deux cas de figures s'offrent à nous :

- si le nombre de Reynolds est faible  $Re \ll 1$ , le nombre de Weissenberg  $Wi \equiv \tau_s \dot{\gamma}$  joue alors le rôle de paramètre de contrôle. Dans le cas de la cellule de Taylor Couette, Larson et *al.* ont montré que des écoulements en rouleaux pouvaient aussi apparaître pour  $Ta > Ta_c$ , mais ici le nombre de Taylor est un nombre de Taylor élastique et s'écrit  $Ta = Ta^e = \Lambda^{1/2} Wi$ . Si le fluide suit le modèle de Maxwell,  $Ta_c^e \simeq 6$ . On parle alors d'instabilités et de turbulence « purement élastiques » [Groisman et Steinberg, 2000; Larson et al., 1990; Morozov et van Saarloos, 2007].
- si à la fois  $Re$  et  $Wi$  sont grands les instabilités et la turbulence qui apparaissent sont appelées « inertio-élastiques » [Dutcher et Muller, 2013; Perge et al., 2014a].

---

1. En appliquant une déformation soudaine à l'échantillon, le signal de contrainte répond de manière élastique aux temps courts puis relaxe progressivement vers zéro en un temps  $\tau_s$ . C'est ce temps de relaxation caractéristique de l'échantillon qui détermine entre autre sa viscoélasticité.

Dans ce cas, le nombre de Taylor doit être défini à partir des nombres de Reynolds et de Weissenberg.

Le nombre d'élasticité  $\mathcal{E} \equiv Wi/Re = \tau_s/\tau$  permet de quantifier l'importance de l'élasticité par rapport à l'inertie. Plus  $\mathcal{E}$  est grand, plus l'élasticité de la solution est importante. Par conséquent, le nombre de Taylor devrait être écrit comme  $Ta = \Lambda^{1/2} f(Re, Wi)$ , avec  $\lim_{\mathcal{E} \rightarrow 0} f(Re, Wi) = Re$  et  $\lim_{\mathcal{E} \rightarrow \infty} f(Re, Wi) = Wi$ . Déterminer la fonction  $f$  quelque soit le nombre d'élasticité  $\mathcal{E}$  reste un sujet de recherche actif pour de nombreuses équipes.

Dans la suite, nous allons nous intéresser à deux solutions de polymères : une solution de polyacrylamide (PAAm) et une solution de polyacrylamide hydrolysée HPAM qui ont un nombre d'élasticité élevé et pour lesquelles l'inertie est négligeable. Les instabilités et la turbulence observées seront par conséquent purement élastiques. Le cas inertio-élastique sera évoqué à travers deux solutions micellaires que nous décrirons dans le chapitre 5.

## 4.2 Préparation de la solution de PAAm

Le polymère que nous utilisons est du polyacrylamide (PAAm) dont la masse moléculaire moyenne est  $M_w = 18$  MDa (Polysciences) ce qui le classe dans les polymères de très longues chaînes. La solution que nous allons étudier est la même que celle utilisée par Groisman et Steinberg [2004]. La fabrication de la solution de PAAm passe dans un premier temps par la préparation d'une solution mère en dissolvant 0,9 g de poudre de PAAm et 3g de NaCl dans 275 mL d'eau. Dans un grain de PAAm se trouvent une grande quantité de chaînes de polymères. En le dissolvant, les bobines se séparent grâce au sel ajouté qui améliore la solubilité du polymère. Cette solution mère est agitée à environ 700-800 tr/min pendant 3h à l'aide d'un agitateur magnétique commercial. Par ce mécanisme, on s'assure d'avoir la plus large distribution de longueurs de chaînes possible en cassant les chaînes de polymères les plus longues. Cette pré-dégradation du polymère réduit les dégradations futures qui peuvent intervenir lors des expériences de cisaillement dans la cellule de Taylor Couette. On augmente ainsi la stabilité de la nature de la solution. Enfin, nous ajoutons 9 g d'isopropanol qui permet d'éviter le vieillissement de la solution et le développement de bactéries ou d'algues dans la solution. Pour finir, de l'eau est ajoutée pour que l'ensemble pèse 300 g. À ce stade, dans la solution mère, les concentrations du PAAm, de NaCl et d'isopropanol sont respectivement 3000 ppm, 1% et 3% en masse. La préparation de la solution fille que nous allons étudier se fait en prélevant une partie de cette solution mère et en la dissolvant dans un solvant newtonien visqueux de 65% de sucre (saccharose) et de 1% de NaCl dans de l'eau. Enfin, nous avons ajouté soit du Kalliroscope (1% en masse) pour la visualisation directe de l'écoulement à l'aide d'une webcam standard, soit des billes de verre creuses (1% en masse) pour rajouter du contraste acoustique dans l'échantillon et mesurer des vitesses d'écoulement à l'aide de la technique d'imagerie ultrasonore. La concentration du PAAm dans la solution fille est alors de 80 ppm. La température du bain est fixée à  $12 \pm 0,1^\circ\text{C}$  et à cette température la viscosité du solvant est de  $\eta_s = 0,324$  Pa.s [Groisman et Steinberg, 2004].

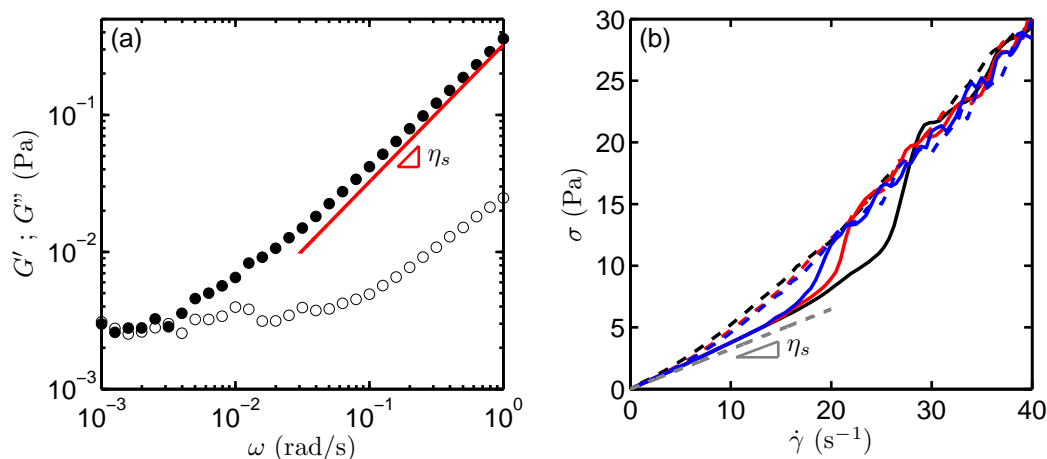


FIGURE 4.1 – **Rhéologie d’une solution de PAAM à T=12°C.** (a) Modules viscoélastiques  $G'$  ( $\circ$ ) et  $G''$  ( $\bullet$ ) en fonction de la pulsation d’oscillation  $\omega$  pour une amplitude de déformation de 5%. La ligne rouge représente la loi  $G'' = \eta_s \omega$ . À haute fréquence, l’échantillon se comporte comme un liquide car il est dominé par la viscosité du solvant. (b) Courbes d’écoulements  $\sigma$  en fonction de  $\dot{\gamma}$  obtenues en augmentant progressivement le taux de cisaillement (traits pleins) puis en le diminuant (en pointillés) pour différentes vitesses de rampe :  $0,42 \text{ s}^{-2}$  (en noir) ;  $0,17 \text{ s}^{-2}$  (en rouge) et  $0,08 \text{ s}^{-2}$  (en bleu). La turbulence se développe d’autant plus tôt que la vitesse de la rampe est faible. La ligne en pointillés gris représente  $\sigma = \eta_s \dot{\gamma}$  avec  $\eta_s = 0,324 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ .

## 4.3 Rhéologie du PAAM

### 4.3.1 Rhéologie linéaire et temps de relaxation viscoélastique

Alors que pour les solutions de micelles géantes le temps de relaxation viscoélastique est bien défini du fait de leur comportement maxwellien dans le régime linéaire [voir figure 1.9(a)], les solutions de polymères ne présentent pas un unique temps  $\tau_s$  mais plutôt tout un spectre de temps de relaxation qui peuvent modifier les instabilités d’écoulement [Larson et al., 1994a]. Par la suite, lorsqu’on discutera du temps de relaxation viscoélastique du PAAM, on considérera le temps le plus long. Pour mesurer le temps de relaxation viscoélastique du PAAM, on réalise des expériences en oscillation de faible amplitude ( $\gamma_0 = 5\%$ ) en étudiant l’évolution de  $G'$  et  $G''$  de l’échantillon en fonction de la fréquence d’oscillation [Fig.4.1(a)]. La figure 4.1(a) montre qu’à haute fréquence l’échantillon est dominé par la viscosité du solvant et se comporte alors comme un liquide. En effet  $G''$  suit la loi  $G'' = \eta_s \omega$  à haute fréquence. Pour pallier à ce problème, Groisman et Steinberg [2004] ont réalisé des tests oscillatoires et mesuré les composantes de la viscosité de la solution  $\eta'$  et  $\eta''$  pour différentes pulsations d’oscillation  $\omega$ . Ils ont répété la même procédure sur le solvant seul pour en déduire les composantes  $\eta'_s$  et  $\eta''_s$ . Les valeurs  $\eta'_p$  et  $\eta''_p$  pour le polymère seul sont alors déduites en retirant la contribution du solvant :  $\eta'_p = \eta' - \eta'_s$  et  $\eta''_p = \eta'' - \eta''_s$ . Le temps de relaxation est finalement calculé comme  $\tau_s = \tan^{-1}(\eta''_p/\eta'_p)/\omega$  qu’ils ont estimé à  $\tau_s \simeq 3,4 \text{ s}$  quand  $\omega \rightarrow 0$  à T=12°C [Groisman et Steinberg, 2004]. De plus le temps de relaxation du

polymère varie avec la température et se comporte comme  $\tau_s \sim \eta_s/T^3$  où  $T$  est la température absolue. Sur une gamme de 5 à 37,5°C, la viscosité du solvant varie de 0,35 à 2,9 Pa.s et le temps de relaxation change de 3,1 à 0,28 s. Pour nos expériences, la température a été fixée à  $T=12^\circ\text{C}$ . N'ayant pas fait cette procédure de détermination du temps de relaxation viscoélastique, nous prendrons comme ordre de grandeur :  $\tau_s \simeq 3$  s.

### 4.3.2 Courbe d'écoulement et transition vers la turbulence élastique

La figure 4.1(b) montre différentes courbes d'écoulement mesurées pour notre solution de PAAM à  $T=12^\circ\text{C}$  en augmentant progressivement le taux de cisaillement puis en le diminuant pour différentes vitesses de rampe [0,42 s<sup>-2</sup> (en noir); 0,17 s<sup>-2</sup> (en rouge) et 0,08 s<sup>-2</sup> (en bleu)]. On observe alors une transition bien marquée dans l'écoulement de la solution de polymères qui survient à respectivement environ 25, 20 et 17 s<sup>-1</sup> (correspondant à des nombres de Weissenberg  $Wi = \tau_s \dot{\gamma}$  de 75, 60 et 51, pour un temps  $\tau_s \simeq 3$  s) et qui se manifeste par une augmentation significative de la contrainte de cisaillement. À la transition, le nombre de Reynolds  $Re$  est proche de zéro, ce qui permet d'affirmer que cet effet est purement dû à l'élasticité de l'échantillon. On voit ainsi la contrainte  $\sigma$  quitter brusquement la branche laminaire, caractérisée par une relation linéaire entre  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$  de coefficient  $\eta = \eta_s + \eta_p \simeq \eta_s$  proche de la viscosité du solvant, pour transiter vers un état turbulent où les fluctuations de la contrainte sont beaucoup plus importantes [voir Fig.4.1(b)] [Groisman et Steinberg, 2004]. Cette transition se fait d'autant plus tôt que la vitesse de la rampe est lente, car alors la turbulence a plus de temps pour se développer. De ce fait, cette manière de déterminer le seuil de la turbulence élastique ne semble pas appropriée. Une méthode plus adaptée sera exposée dans le paragraphe 4.4.3.

Après avoir atteint la turbulence, la rampe descendante en taux de cisaillement montre une hystérésis prononcée caractéristique des instabilités purement élastiques [Groisman et Steinberg, 1998b]. Encore une fois, l'aire de l'hystérésis est d'autant plus faible que la vitesse de la rampe est lente. Pour comprendre cette différence entre la rampe montante et descendante, une visualisation locale de l'écoulement est nécessaire.

## 4.4 Imagerie d'écoulement du PAAM

### 4.4.1 Visualisation directe

La figure 4.2 montre les motifs d'écoulement observés pour un échantillon dans lequel on a rajouté du Kalliroscope et soumis à une rampe linéaire montante puis descendante entre  $\dot{\gamma} = 0$  et 20 s<sup>-1</sup> pour une vitesse de rampe de 0,07 s<sup>-1</sup>/s. Ce diagramme spatio-temporel montre que dans un premier temps, pour la gamme de taux de cisaillement  $0 < \dot{\gamma} < 8$  s<sup>-1</sup>, l'écoulement est laminaire (CF). Puis une instabilité se développe vers  $\dot{\gamma} \simeq 8$  s<sup>-1</sup> où l'on voit des structures qui apparaissent. Cependant, dès  $\dot{\gamma} \simeq 10$  s<sup>-1</sup>, ces structures se déstabilisent et conduisent à des oscillations désordonnées (DO). Pour  $10 < \dot{\gamma} < 20$  s<sup>-1</sup>, la turbulence élastique se développe et ces

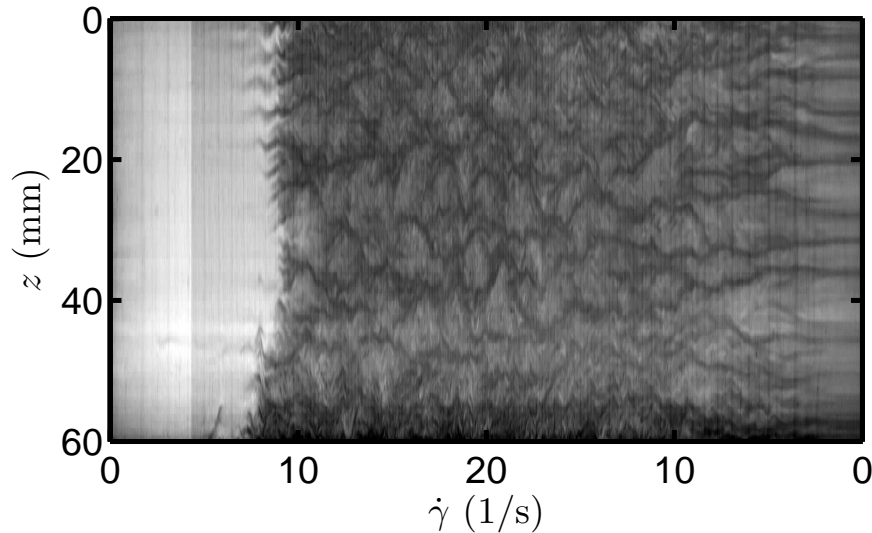


FIGURE 4.2 – Diagramme spatio-temporel montrant le passage par différents états d’une solution de PAAm à  $T=12^{\circ}\text{C}$  en appliquant une rampe linéaire montante puis descendante entre  $\dot{\gamma} = 0$  et  $20 \text{ s}^{-1}$ . Visualisation directe des motifs d’écoulement en utilisant un échantillon avec du Kalliroscope. La vitesse de la rampe est de  $0,07 \text{ s}^{-1}/\text{s}$ . L’échelle de gris représente l’intensité lumineuse réfléchiée et collectée par une webcam située en dehors de la cellule de Couette transparente. Le diagramme suggère que le chemin suivi par l’échantillon est le suivant :  $\text{CF} \rightarrow \text{DO} \rightarrow \text{DW} \rightarrow \text{CF}$ . La route vers la turbulence est donc ici très rapide et l’instabilité qui se développe est très vite dégénérée et conduit à des oscillations désordonnées (DO). Bien que la transition sera étudiée en détail dans le paragraphe 4.4.3 nous pouvons déjà estimer le seuil à  $8 \text{ s}^{-1}$ . Enfin, la descente en taux de cisaillement nous permet de former des structures stables nommées diwhirls (DW) qui perdurent jusqu’à la fin de l’expérience.

structures s’annihilent et se créent en permanence. En diminuant le taux de cisaillement on s’aperçoit alors que le système « se calme » progressivement : les créations se font plus rares et les différentes annihilations conduisent à des structures stables que l’on nomme « diwhirls » (DW) [Groisman et Steinberg, 1996]. Une fois formés, ces diwhirls ont une longue durée de vie et persistent jusqu’à la fin de la rampe. Ceci explique que le point de rencontre entre la courbe d’écoulement montante et descendante est proche de zéro [Fig.4.1(b)]. Une description plus précise de la structure de ces diwhirls sera donnée dans le paragraphe 4.4.2.

#### 4.4.2 Imagerie ultrasonore des diwhirls du PAAm

##### Trempe en taux de cisaillement

Effectuer des rampes en taux de cisaillement montante puis descendante n’est pas le seul moyen de former des diwhirls. C’est une technique fiable mais un peu longue. Les diwhirls peuvent s’obtenir par un processus de trempe, où l’on impose dans un premier temps un taux de cisaillement suffisamment important et pendant suffisamment longtemps pour développer les oscillations désordonnées (DO) (typiquement  $\dot{\gamma} > 10 \text{ s}^{-1}$  et

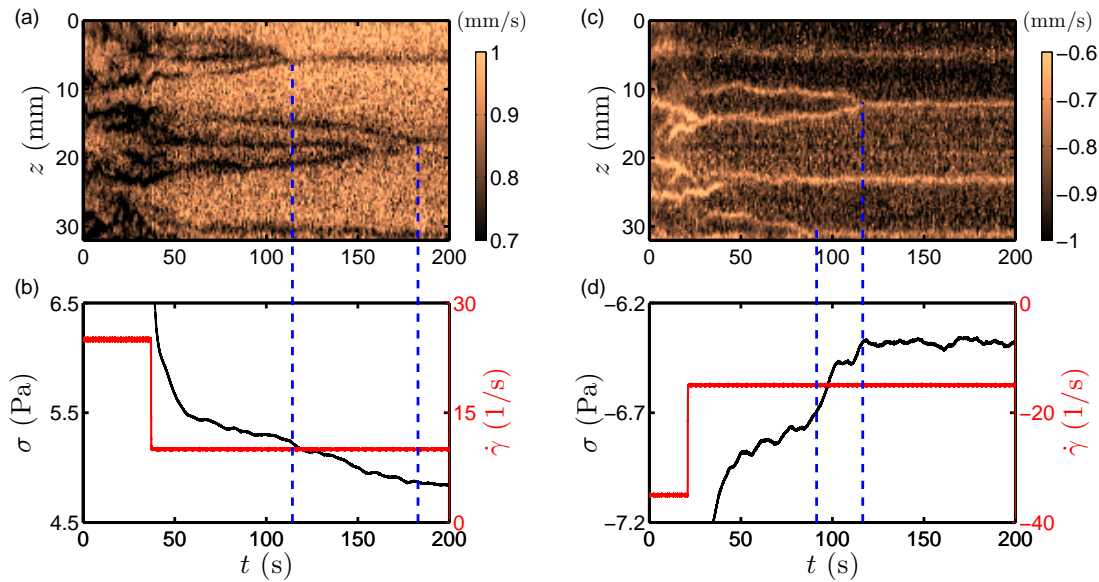


FIGURE 4.3 – **Annihilation et création de diwhirls stables à l'aide de trempes en taux de cisaillement pour une solution de PAAM à  $T=12^\circ\text{C}$ .** (a) et (c) Diagrammes spatio-temporels de la vitesse adimensionnée  $v(r_0, z, t)/(\dot{\gamma}d)$  à une position  $r_0 \simeq R_i + d/4$  du rotor en utilisant un échantillon dans lequel des billes de verre ont été ajoutées. (b) et (d) Évolution temporelle des signaux de contrainte (en noir) et du taux de cisaillement (en rouge). Pour (a) et (b) on applique un taux de cisaillement positif de  $\dot{\gamma} = +25 \text{ s}^{-1}$  pendant environ 60 s avant de passer à  $10 \text{ s}^{-1}$  tandis que pour (c) et (d) le sens de rotation est négatif et passe de  $\dot{\gamma} = -35$  à  $-15 \text{ s}^{-1}$ . Le temps  $t = 0 \text{ s}$  correspond au temps du début de l'acquisition des ultrasons. Une annihilation de deux diwhirls implique une diminution de la contrainte de cisaillement d'environ 0,2 Pa. Dès que deux diwhirls sont espacés de plus de  $5d = 10 \text{ mm}$ , ils n'interagissent plus et restent stables.

1 min) puis redescendre à un taux de cisaillement plus faible durant lequel les oscillations désordonnées fusionnent pour créer la structure attendu : les diwhirls (DW). Les figures 4.3(a) et (b) illustrent deux expériences de telles trempes en taux de cisaillement. La figure 4.3(a) montre l'annihilation et la formation de diwhirls stables pour un taux de cisaillement passant de  $\dot{\gamma} = +25 \text{ s}^{-1}$  appliqué pendant environ 1 min à  $\dot{\gamma} = +10 \text{ s}^{-1}$ , tandis que la figure 4.3(b) illustre le cas pour un taux de cisaillement négatif de  $\dot{\gamma} = -35 \text{ s}^{-1}$  à  $\dot{\gamma} = -15 \text{ s}^{-1}$ . Dans les deux cas, on observe une transition  $\text{DO} \rightarrow \text{DW}$  où les diwhirls les plus proches interagissent et fusionnent entre eux pour donner, au bout d'environ 150 s dans le premier cas et 100 s dans le second, des diwhirls stables. On remarque alors que dès que la distance entre deux diwhirls dépasse  $5d = 10 \text{ mm}$  alors ils ne se déplacent plus l'un vers l'autre pour fusionner [Groisman et Steinberg, 1996]. On parle alors aussi de « paire de rouleaux solitaires » car contrairement au cas newtonien où il existe une longueur d'onde bien définie, ici le nombre de diwhirls à l'issue du protocole peut varier d'une expérience à l'autre.

De plus, la synchronisation entre l'imagerie ultrasonore et les mesures de la contrainte et du taux de cisaillement fournies par le rhéomètre nous permet d'observer l'influence de ces annihilations sur la contrainte. En effet, on note alors que la fusion de deux diwhirls s'accompagne d'une diminution de la contrainte d'environ 0,2 Pa. Dans le

paragraphe 4.4.2, nous étudierons plus en détail la forme d'un diwhirl. Mais dès à présent, nous savons qu'un diwhirl est composé de deux vortex contra-rotatifs qui, comme pour les rouleaux de Taylor dans le cas newtonien, apportent une dissipation d'énergie supplémentaire dans l'écoulement. Cette dissipation demande donc une contrainte plus importante lorsqu'on impose un taux de cisaillement constant. Lorsque deux diwhirls fusionnent, une partie de cette dissipation d'énergie est alors perdue et la contrainte diminue. Nous allons à présent estimer l'énergie d'un diwhirl.

### Énergie d'un diwhirl

Notons  $\mathcal{E}_d$  l'énergie d'un diwhirl, c'est-à-dire d'une paire de vortex contra-rotatifs. Nous savons que lorsque deux diwhirls fusionnent la contrainte diminue d'environ  $\Delta\sigma = 0,2$  Pa. On peut alors estimer l'énergie d'un diwhirl par la relation :

$$\mathcal{E}_d = \Delta\sigma V_d \quad (4.2)$$

où  $V_d = \delta z \pi (R_o^2 - R_i^2)$  représente le volume occupé par un diwhirl, c'est-à-dire la couronne de hauteur  $\delta z \simeq 1$  mm et de largeur  $R_o - R_i = d = 2$  mm. Ce qui nous donne en première approximation, une énergie  $\mathcal{E}_d \simeq 6.10^{-8}$  J. Il n'existe, à notre connaissance, aucune valeur théorique de l'énergie d'un diwhirl.

Pour se donner une idée, on peut cependant comparer cette valeur à l'énergie dissipée par une paire de rouleaux inertiels contra-rotatifs dans de l'eau. À partir de l'insert de la figure 3.5(b), on peut estimer l'augmentation de la viscosité apparente du fluide à  $\Delta\eta = 0,5.10^{-3}$  Pa.s lors de la mise en place de cette instabilité inertielle pour un taux de cisaillement appliqué  $\dot{\gamma} = 80$  s<sup>-1</sup> dans une cellule de Taylor-Couette de rayons intérieur  $R_i = 48$  mm et extérieur  $R_o = 50$  mm. La dernière image de la figure 3.5(a) montre 8 paires de rouleaux contra-rotatifs. En prenant en compte le haut et le bas de la cellule de Taylor-Couette qui n'est pas imagé par la sonde ultrasonore, estimons à 10 le nombre de paire de rouleaux contra-rotatifs présents sur toute la hauteur de la cellule. L'augmentation de la viscosité due à une paire de rouleaux est donc :  $\Delta\eta/10 = 5.10^{-5}$  Pa.s. Deux paires de rouleaux étant séparées d'une distance  $\delta z = \lambda = 2d = 4$  mm, on peut estimer l'énergie dissipée par une paire de rouleaux contra-rotatifs dans de l'eau à :

$$\mathcal{E}_d = \frac{\Delta\eta}{10\dot{\gamma}} V_d = \frac{\Delta\eta}{10\dot{\gamma}} \delta z \pi (R_o^2 - R_i^2) \simeq 1.10^{-12} \text{ J} \quad (4.3)$$

L'énergie dissipée par un diwhirl, c'est-à-dire par une paire de « spirales » contra-rotatives, dans une solution de polymère, (dont la viscosité est plus de 500 fois celle de l'eau), est donc plus de  $10^4$  fois plus grande que l'énergie de dissipation d'une paire de rouleaux de Taylor (bien que l'étude spatiale selon  $z$  d'un diwhirl soit 4 fois plus faible). Ceci pourrait donc être une piste pour expliquer le caractère isolé d'un diwhirl.

### Forme d'un diwhirl

Un diwhirl est composé non pas de deux rouleaux contra-rotatifs bien symétriques comme nous avons pu l'observer dans le cas des rouleaux de Taylor dans l'eau, mais de deux vortex asymétriques allongés tournant dans des sens opposés. La figure 4.4,

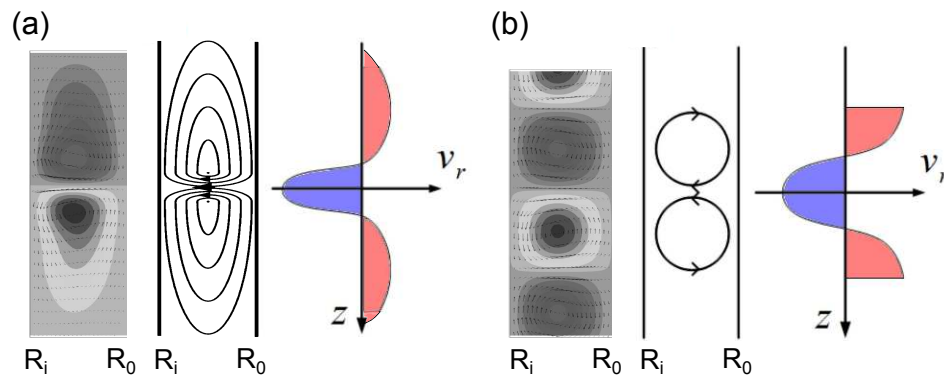


FIGURE 4.4 – **Comparaison entre la forme d'un diwhirl et d'une paire de rouleaux contra-rotatifs typique de l'instabilité de TVF.** Les images en niveau de gris sont tirées de Lange et Eckhardt [2001] et représentent la fonction de courant où les flèches parallèles aux lignes de courant indiquent le sens de l'écoulement. (a) Un diwhirl est composé de deux vortex solitaires asymétriques dont les lignes de courant sont représentées schématiquement sur la figure du milieu tirée de Groisman et Steinberg [1997]. L'asymétrie entre l'écoulement centripète et centrifuge se traduit par un écoulement centripète concentré dans une petite région entre les deux vortex. Le profil de vitesse  $v_r$  possède donc une partie centripète très piquée et peu étendue par rapport à la partie centrifuge. (b) La paire de rouleaux contra-rotatifs dans de l'eau est quant à elle plus symétrique. Même si l'écoulement centrifuge est plus important que l'écoulement centripète, le profil de vitesse  $v_r$  reste symétrique.

adaptée de [Lange et Eckhardt, 2001] et [Groisman et Steinberg, 1997], propose des simulations numériques, une vision schématique de la forme d'un diwhirl ainsi que l'allure de la composante  $v_r$  de la vitesse qui en découle et la compare avec le cas des rouleaux de Taylor dans le cas newtonien. Le cas des rouleaux de Taylor a déjà été étudié dans le paragraphe 3.2.2. Dans ce cas, l'écoulement centrifuge prédomine sur l'écoulement centripète cependant, dans une première approximation, on peut supposer le profil  $v_r$  symétrique. Dans le cas d'un diwhirl, l'origine de l'instabilité est purement élastique. La prédominance de l'écoulement centripète sur l'écoulement centrifuge se caractérise par un profil  $v_r$  asymétrique avec une partie négative importante et fortement localisée au niveau du cœur du diwhirl. Lange et Eckhardt [2001] ont estimé à partir de leurs simulations numériques que la région où le fluide se déplace vers le cylindre intérieur est assez petite et a une taille constante et indépendante de l'élasticité de l'échantillon d'environ  $0,7d$  où  $d$  est la taille de l'entrefer, alors que la région où l'écoulement est centrifuge a une taille plus large et passe de  $2,0d$  à  $2,4d$  lorsqu'on augmente l'élasticité. Rappelons ici que dans les cas des rouleaux symétriques de Taylor, les régions centrifuge et centripète ont une taille similaire de l'ordre de  $d$  [voir Fig.3.11].

Grâce à notre technique d'imagerie ultrasonore, la taille et la forme d'un diwhirl ont pu être confirmés à travers la mesure de la composante radiale  $v_r$  de la vitesse. Rappelons que la vitesse mesurée  $v$  possède deux composantes  $v_\theta$  et  $v_r$  du fait que la sonde ultrasonore soit inclinée d'un angle d'incidence  $\Phi$ . Pour en déduire  $v_r$  il faut donc combiner les mesures de vitesse  $v_+$  et  $v_-$  de deux diwhirls stables obtenus au même taux de cisaillement mais pour des sens de rotation différents. De plus, il est fort probable qu'à l'issue des deux expériences, les positions verticales des diwhirls formés ne soient pas identiques. Il faut alors les recentrer avant d'appliquer la combinaison :



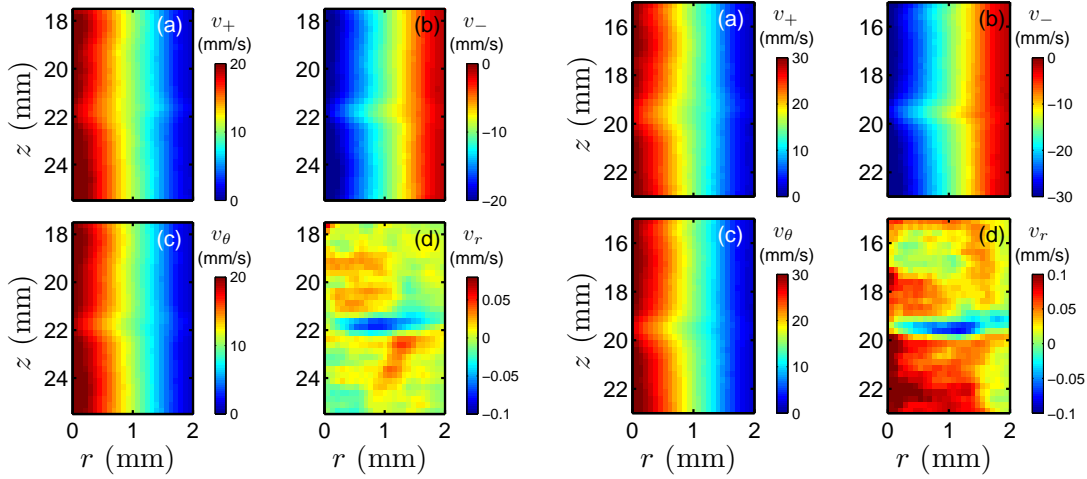


FIGURE 4.5 – Analyse des diwhirls dans une solution de PAAm à  $T=12^\circ\text{C}$  pour des taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  (à gauche) et  $15 \text{ s}^{-1}$  (à droite). (a) [respectivement (b)] Carte du champ de vitesse  $\langle v_+(r, z, t) \rangle_t$  [respectivement  $\langle v_-(r, z, t) \rangle_t$ ] zoomée sur une partie de la hauteur  $z$  et moyennée sur 200 séquences de 50 tirs consécutifs séparées de 2 s pour un taux de cisaillement imposé par le cylindre intérieur  $\dot{\gamma} = +10 \text{ s}^{-1}$  [respectivement  $\dot{\gamma} = -10 \text{ s}^{-1}$ ] (à gauche) et  $\dot{\gamma} = +15 \text{ s}^{-1}$  [respectivement  $\dot{\gamma} = -15 \text{ s}^{-1}$ ] (à droite) et une fréquence de répétition des tirs  $f_{PRF} = 500 \text{ Hz}$  (à gauche) et  $f_{PRF} = 750 \text{ Hz}$  (à droite) dans l'état stationnaire. (c) [respectivement (d)] Carte du champ de vitesse azimutale  $v_\theta(r, z, t)$  [respectivement radial  $v_r(r, z, t)$ ] calculé à partir de (a) et (b) comme expliqué dans le texte.

$v_\theta = \frac{v_+ - v_-}{2}$  et  $v_r = -\frac{\tan \theta}{2}(v_+ + v_-)$ . La figure 4.5 illustre les cartes des champs de vitesse :  $v_+$ ,  $v_-$ ,  $v_\theta$  et  $v_r$  pour des taux de cisaillement appliqués de  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  (à gauche) et  $\dot{\gamma} = 15 \text{ s}^{-1}$  (à droite). Dans les deux cas, la combinaison entre les sens de rotation positif et négatif a été réalisée sur des diwhirls isolés et stables spatialement et temporellement. Comme attendu, les deux cartes du champ de vitesse  $v_r$  présentent une tache bleue, correspondant à un écoulement centripète intense, localisé au niveau du cœur du diwhirl dont l'épaisseur  $\delta z$  n'excède pas le millimètre.

À ce stade, nous atteignons les limites de la technique au niveau de sa résolution spatiale verticale qui est donnée par l'espacement entre deux transducteurs :  $250 \mu\text{m}$ . De ce fait, nous ne pouvons pas vraiment résoudre la taille d'un diwhirl qui se résume finalement à 3-4 pixels. Il est donc difficile d'estimer correctement le profil de vitesse  $v_r$  en fonction de la position verticale  $z$  en particulier au niveau du cœur du diwhirl. La figure 4.6(a) montre les deux profils  $v_r(r_0, z)$  en fonction de l'altitude  $z$  tirés des deux expériences de la figure 4.5, où  $z = 0$  correspond à la position centrale du diwhirl et  $r_0 \simeq R_i + d/2$  correspond à la position dans l'entrefer à partir du rotor. La comparaison de ces mesures ultrasonores avec les mesures par vélocimétrie laser (LDV) effectuées par Groisman et Steinberg [1997] [Fig.4.6(b)] et les simulations numériques effectuées par Lange et Eckhardt [2001] [Fig.4.6(c)] montre une bonne correspondance entre les allures de profil de vitesse  $v_r$  ainsi que la taille de la région où l'écoulement est centripète. En effet, grâce à l'imagerie ultrasonore nous avons estimé la zone où  $v_r(r_0, z)$  est négatif à environ  $0,6d$  ce qui est en accord avec la valeur  $0,7d$  mesurée par Lange et Eckhardt [2001] pour des fluides dont le rapport  $\kappa = De/Re$  varie de 0,15

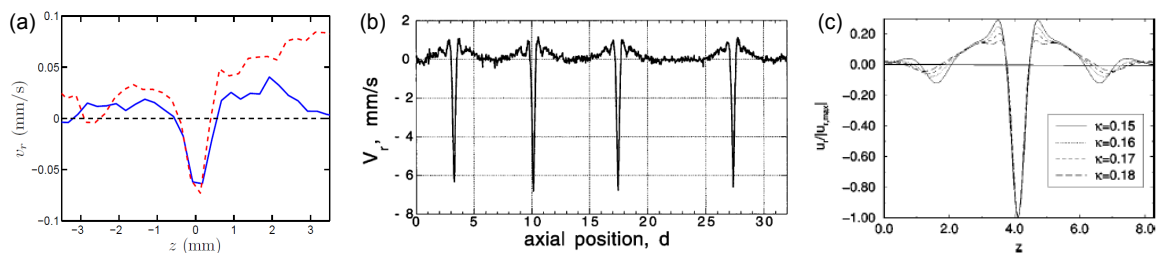


FIGURE 4.6 – **Évolution de la composante radiale de la vitesse  $v_r(r_0, z)$  en fonction de la position verticale  $z$ .** (a) Vitesse radiale  $v_r(r_0, z)$  calculée à partir des mesures ultrasonores des vitesses  $v_+$  et  $v_-$ , et tracée pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/2$  du rotor correspondant au milieu de l'entrefer.  $v_r(r_0, z)$  est tracée en fonction de la position verticale  $z$  centrée sur un diwhirl en  $z = 0$ . Le trait plein bleu correspond à un taux de cisaillement appliqué de  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  tandis que les pointillés rouges correspondent à un taux de cisaillement appliqué de  $\dot{\gamma} = 15 \text{ s}^{-1}$ . La taille de la région centripète est estimée à environ  $0,6d$ . (b) Figure tirée de Groisman et Steinberg [1997] représentant la vitesse radiale mesurée par vélocimétrie laser doppler (LDV) à une position proche de celle du milieu de l'entrefer où  $v_r$  est maximale. (c) Figure tirée de Lange et Eckhardt [2001] représentant le profil de vitesse  $u_r$  normalisée d'un diwhirl pour  $Re = 84,0$  et différents nombres d'élasticité  $\mathcal{E} = Wi/Re$  (noté  $\kappa$  ici) obtenue par simulations. L'écoulement centripète n'est guère affecté par l'augmentation de l'élasticité et la taille de la région où  $v_r < 0$  est d'environ  $0,7d$ . L'écoulement centrifuge augmente avec  $\mathcal{E}$ , de  $2,0d$  à  $\mathcal{E} = 0,15$  à  $2,4d$  à  $\mathcal{E} = 0,18$ .  $z$  ici est mesuré en taille d'entrefer  $d$ .

à  $0,18$  et avec la valeur  $0,5d$  mesurée par Groisman et Steinberg [1997] par LDV et pour la même solution de PAAM. Cependant, les rapports entre la vitesse centrifuge maximale et la vitesse centripète maximale qui est d'environ  $0,7/5,5 \simeq 0,13$  dans le cas de Groisman et Steinberg [1998a] et d'environ  $0,2$  pour Lange et Eckhardt [2001] ne sont pas comparables avec nos mesures par vélocimétrie ultrasonore où l'on trouve plutôt un rapport d'environ  $0,025/0,06 \simeq 0,4$ . Mais encore une fois ici la faible résolution spatiale verticale ne nous permet pas de résoudre suffisamment précisément le pic en  $v_r$  ce qui limite l'évaluation de ce rapport. Enfin, notre technique de vélocimétrie ultrasonore actuelle ne nous permet pas de mesurer la composante  $v_z$  de la vitesse et donc de la comparer avec les résultats obtenus par LDV ou simulations.

### 4.4.3 Route vers la turbulence

#### L'eau et la solution de polymère : deux chemins différents

Nous avons vu précédemment que dans le cadre d'un fluide newtonien et notamment de l'eau, la route vers la turbulence appelée dans ce cas « turbulent Taylor vortices » (TTV) passe par différentes étapes (voir Fig.3.12). Nous avons relevé tout d'abord une première instabilité nommée « Taylor Vortex Flow » caractérisée par l'apparition de rouleaux contra-rotatifs de longueur d'onde bien définie  $\lambda \simeq 2d$  et puis progressivement ces rouleaux se déstabilisent lorsqu'on augmente progressivement le taux de cisaillement et on observe une succession d'instabilités : WVF, MWV, WVT et finalement TTV. L'explication de ces transitions progressives vers la turbulence dans le cas de l'eau se fait par l'interprétation de la figure 4.7(a) tirée de Tagg [1994] : com-

paraison d'une analyse de stabilité linéaire réalisée par Riecke et Paap [1987] (courbe en trait plein) et confirmée par les données expérimentales de Dominguez-Lerma et al. [1986] (ronds noirs). Cette courbe dite de « stabilité marginale » représente l'écart relatif au seuil  $\epsilon = (Ta - Ta_c)/Ta_c$  en fonction de l'écart relatif au nombre d'onde critique  $k = (k - k_c)/k_c$  et délimite les zones stables (en-dessous) des zones instables (au-dessus). Ainsi, pour une valeur donnée de  $\epsilon$ , autrement dit du paramètre de contrôle  $Ta$ , on connaît les valeurs de  $k$  qui peuvent être stables et celles qui sont instables. En particulier, pour  $\epsilon = 0$ , une seule valeur de  $k = k_c$  conduit à un écoulement instable caractérisé par l'apparition de rouleaux de Taylor séparés de  $\lambda = 2\pi/k_c = 2d$ . Dès lors que  $\epsilon > 0$ , c'est-à-dire pour des valeurs de  $Ta > Ta_c$ , toute une plage de nombres d'onde  $k$  situés entre les deux portions de la courbe peuvent conduire à un écoulement instable. Pour s'assurer d'avoir une instabilité de TVF avec une longueur d'onde bien définie, le protocole à adopter est la rampe en taux de cisaillement. Cependant il est tout de même possible d'obtenir des rouleaux de Taylor réguliers en sautant directement d'un taux de cisaillement nul à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$ . En effet la figure 4.7(b) représente un diagramme spatio-temporel d'une mise en écoulement d'une solution newtonienne (eau+Kalliroscope) pour un écart relatif au seuil  $\epsilon = 0,08$ . Cette figure montre l'émergence de rouleaux de Taylor séparés d'une seule longueur d'onde stable bien définie  $\lambda = 2d$ , qui correspond au minimum de la courbe  $\epsilon = f((k - k_c)/k_c)$ . C'est grâce à la forme parabolique de la courbe de stabilité marginale et à l'existence de ce minimum que l'on peut passer progressivement d'un écoulement stable à un écoulement turbulent dans le cas de l'eau comme nous avons pu le voir sur la figure 3.4.

Le scénario est différent dans le cas d'une solution de polymères. En effet, nous pouvons voir à travers la figure B.1 situé dans l'annexe B que malgré l'application d'une rampe lente en taux de cisaillement, il était impossible d'obtenir des rouleaux réguliers et que très rapidement ils se désorganisaient pour conduire à des oscillations désordonnées (DO). Ceci s'explique par l'interprétation de la figure 4.7(c) tirée de Larson et al. [1990] représentant les courbes de stabilité marginale calculées théoriquement par une analyse de stabilité linéaire pour un fluide d'Oldroyd-B<sup>2</sup>. Dans cette figure, le nombre de Taylor élastique (et non l'écart au seuil) est tracé en fonction du nombre d'onde. L'allure de la courbe est très différente de celle obtenue pour un fluide newtonien. En effet, le résultat de l'analyse de stabilité linéaire pour une solution de polymère montre une courbe beaucoup plus plate sans minimum bien défini. De ce fait, dès que l'on dépasse le seuil ( $Ta > Ta_c$ ), une vaste gamme de nombres d'onde est générée ce qui explique l'impossibilité d'obtenir une instabilité avec une longueur d'onde régulière comme pour les rouleaux de Taylor. On peut observer cette transition lorsqu'on impose un démarrage en écoulement à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 8 \text{ s}^{-1}$ . La figure 4.7(d) montre un diagramme spatio-temporel d'une visualisation directe obtenue à l'aide d'une webcam standard, d'une solution de PAAm avec du Kalliroscope. On remarque alors qu'il est impossible d'obtenir des rouleaux réguliers car ils sont perturbés très rapidement par l'apparition de nouvelles longueurs d'onde qui déstabilisent l'écoulement et conduisent à des oscillations désordonnées (DO). Il n'est donc pas possible de définir d'état in-

---

2. Le modèle d'Oldroyd-B correspond à l'association en parallèle d'un solvant de viscosité  $\eta_s$  constitué de courtes chaînes de polymère (polybutène (PB) par exemple) et d'un fluide de Maxwell de viscosité  $\eta_p$  et de module élastique  $G_0$  constitué de longues chaînes de polymères (polyisobutylène (PIB) par exemple).

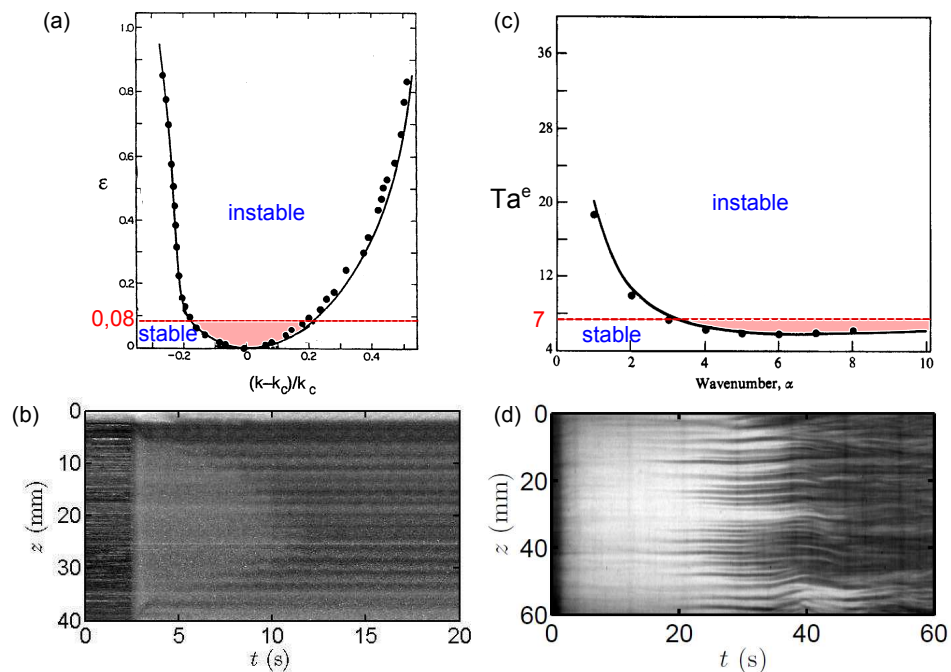


FIGURE 4.7 – **Comparaison entre les résultats d’analyse de stabilité linéaire pour un fluide newtonien et pour une solution de polymère.** (a) Figure adaptée de Tagg [1994] représentant la courbe de stabilité marginale pour l’instabilité inertielle TVF. Les points correspondent à des données expérimentales de Dominguez-Lerma et al. [1986] tandis que la courbe en trait plein a été calculée par Riecke et Paap [1987].  $\epsilon$  correspond ici à l’écart relatif au seuil :  $\epsilon = (Ta - Ta_c)/Ta_c$ . (b) Diagramme spatio-temporel de la mise en écoulement d’une solution newtonienne (eau+Kalliroscope) pour un écart relatif au seuil de  $\epsilon = 0,08$ . L’instabilité TVF qui se développe converge vers une seule longueur d’onde de rouleaux et reste stable. (c) Figure adaptée de Larson et al. [1990] représentant la courbe de stabilité marginale calculée théoriquement par une analyse de stabilité linéaire pour un fluide d’Oldroyd-B. L’ordonnée correspond au nombre de Taylor élastique défini à partir du nombre de Weissenberg :  $Ta^e = \Lambda^{1/2} Wi$  et il est représenté en fonction du nombre d’onde  $\alpha$ . Les points correspondent à un calcul avec la technique d’analyse numérique de Galerkin. (d) Diagramme spatio-temporel d’une visualisation directe d’un démarrage d’écoulement pour  $Ta^e = 7$  (si  $\tau_s = 3$  s) dans une solution de PAAm à  $T=12^\circ\text{C}$  dans laquelle on a rajouté du Kalliroscope. L’instabilité qui se développe est très vite déstabilisée par l’apparition de nouvelles longueurs d’onde qui conduisent à des oscillations désordonnées.

termédiaire stable entre l’écoulement laminaire purement azimutal dit écoulement de Couette (CF) et l’écoulement que l’on peut qualifier de turbulent caractérisé par des oscillations désordonnées (DO).

### Temps de nucléation de la turbulence

Nous allons à présent nous intéresser au temps de nucléation de la turbulence c’est-à-dire au temps mis par l’écoulement pour développer des oscillations désordonnées lorsqu’on le soumet à des démarrages d’écoulement à taux de cisaillement imposé. La figure 4.8 illustre deux exemples de démarrage d’écoulement pour des taux de cisaille-

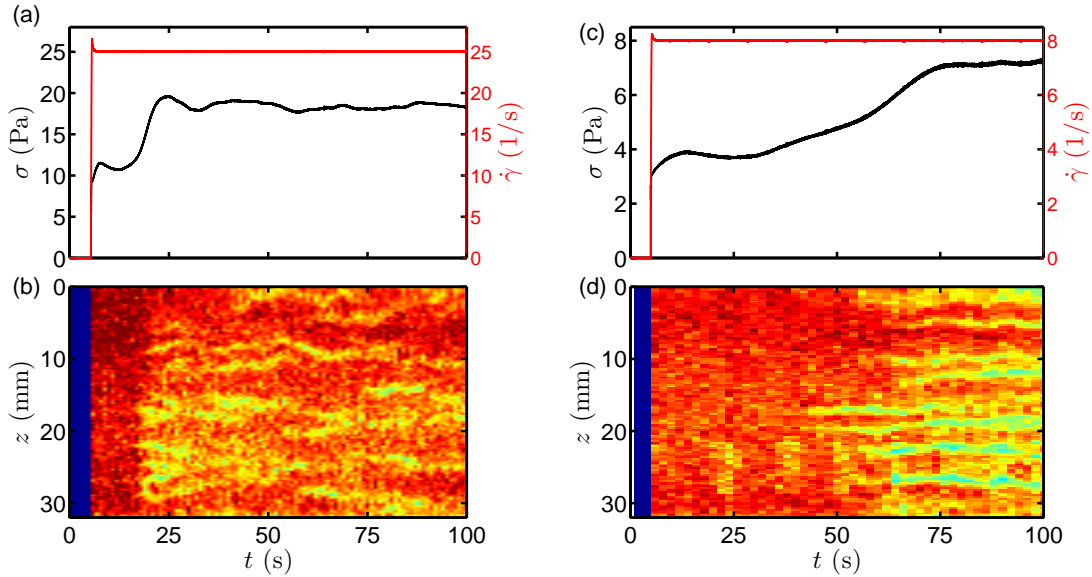


FIGURE 4.8 – Développement de la turbulence dans une solution de PAAm à  $T=12^{\circ}\text{C}$ . (a) et (c) Évolution temporelle de la contrainte  $\sigma$  et du taux de cisaillement appliqué  $\dot{\gamma}$  pour un démarrage en écoulement à (a) :  $\dot{\gamma} = 25 \text{ s}^{-1}$  et à (c) :  $\dot{\gamma} = 8 \text{ s}^{-1}$ . (b) et (d) Diagramme spatio-temporel de la vitesse  $v(r_0, z, t)$  mesurée par vélocimétrie ultrasonore pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/4$  du rotor en utilisant un échantillon avec des billes de verre. La turbulence commence à se développer ici après  $\tau_T \simeq 12 \text{ s}$  dans le premier cas et au bout de  $\tau_T \simeq 40 \text{ s}$  dans le second.

ment imposés de  $\dot{\gamma} = 25 \text{ s}^{-1}$  pour les figures (a) et (b) et de  $\dot{\gamma} = 8 \text{ s}^{-1}$  pour les figures (c) et (d). La synchronisation entre le rhéomètre et notre dispositif d'imagerie ultrasonore nous permet de corréler les données de contrainte globale fournies par le rhéomètre avec la visualisation de l'écoulement. Dans le premier cas, le taux de cisaillement imposé  $\dot{\gamma} = 25 \text{ s}^{-1}$  est loin du taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ . La transition de l'écoulement laminaire vers un écoulement désordonné est marquée par un saut en contrainte bien défini et un développement rapide de la turbulence. Pour des écarts au seuil plus faibles, la transition est beaucoup plus lente et moins franche. Sur l'exemple des figures 4.8 (c) et (d), on remarque que l'augmentation de la contrainte peut présenter des paliers et que le développement de la turbulence n'est pas homogène selon la direction verticale  $z$ . En effet, nous voyons que dans ce cas, elle débute au milieu de la cellule de Taylor-Couette. Cependant, la corrélation en temps entre la rhéologie et les données ultrasonores nous permet d'affirmer que l'augmentation de la contrainte correspond bien au développement de la turbulence. Ainsi dans le but d'acquérir un maximum de statistique, la détermination des temps de nucléation de la turbulence est effectuée à partir de la rhéologie. Il correspond au maximum de la dérivée temporelle du signal de viscosité dynamique.

Dans le but d'obtenir un état initial identique pour chacune des expériences, nous avons choisi d'adopter la procédure suivante constituée de deux étapes. Nous imposons dans un premier temps un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$  pendant 5 min durant lequel on vérifie que sur cette durée aucune instabilité ne se développe. Puis, dans un second temps, nous imposons une autre marche en taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  supérieure

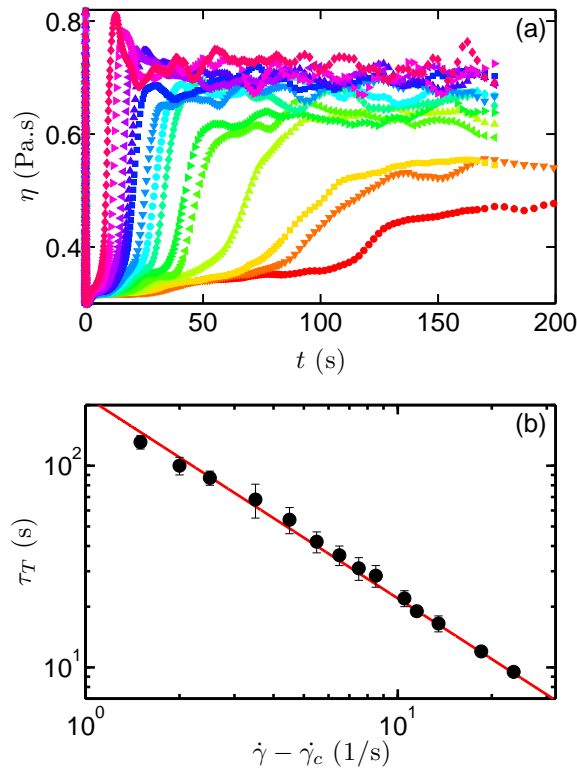


FIGURE 4.9 – **Route vers la turbulence dans une solution de PAAM à  $T=12^\circ\text{C}$ .** (a) Évolution temporelle de la viscosité dynamique  $\eta$  pour différents taux de cisaillement appliqués :  $\dot{\gamma} = 8; 8,5; 9; 10; 11; 12; 13; 14; 15; 17; 18; 20; 25; 30 \text{ s}^{-1}$  après un démarrage en écoulement à  $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$  appliqué pendant 5 min. (b) Temps de nucléation  $\tau_T$  de la turbulence en fonction de la différence  $(\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)$ . La loi suivie est  $\tau_T \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$ . Le seuil a été évalué à  $\dot{\gamma}_c = 6,5 \text{ s}^{-1}$ .

à  $\dot{\gamma} = 6,5 \text{ s}^{-1}$  correspondant à la valeur du taux de cisaillement critique<sup>3</sup>. La figure 4.9(a) représente l'évolution temporelle de la viscosité dynamique pour différents taux de cisaillement appliqués après un démarrage en écoulement à  $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$  appliqué pendant 5 min. Pour l'ensemble de ces expériences, l'évolution temporelle du signal de viscosité nous permet de déterminer le temps de nucléation  $\tau_T$  de la turbulence à partir du maximum de la dérivée temporelle de  $\eta$ . Les résultats sont résumés sur les figures 4.9(b) qui montre l'évolution de  $\tau_T$  en fonction de l'écart au seuil  $(\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)$ . La loi suivie est de type  $\tau_T \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$ . Cependant, il est impossible de caractériser cette transition de supercritique car contrairement au cas de l'instabilité de TVF, elle n'est pas réversible et présente bien une hystérésis à la transition.

#### 4.4.4 Vers une étude statistique de la turbulence

Pour conclure sur ce chapitre, l'étude de la solution de PAAM nous a permis de retrouver une partie des résultats déjà obtenus par Steinberg et Groisman. Grâce à

3. La valeur du taux de cisaillement initial ainsi que sa durée d'application ne semble pas ou peu influencer le temps de nucléation de la turbulence. Nous avons également effectué des mesures à  $\dot{\gamma} = 1; 2; 3$  et  $4 \text{ s}^{-1}$  pour des durées de 1; 2; 3 et 4 min, les résultats sont sensiblement les mêmes.

notre technique d'imagerie ultrasonore corrélée aux mesures rhéologiques, nous avons pu ainsi mettre en évidence la formation d'oscillations désordonnées puis de diwhirls. Les caractéristiques d'un diwhirl (énergie, forme...) ont été également rappelées. Enfin la transition vers la turbulence élastique a été étudiée et une loi d'évolution du temps de nucléation en fonction du taux de cisaillement a été proposée. L'étude de la statistique de la turbulence dans cette solution de PAAM est en cours mais les résultats obtenus restent trop prématurés pour être présentés dans ce manuscrit. Un aperçu des expériences préliminaires est cependant donné sur la figure 4.10. Elle représente l'état de la turbulence dans une solution de PAAM à  $T=12^{\circ}\text{C}$  soumise à un écoulement à cisaillement imposé à  $\dot{\gamma} = 45 \text{ s}^{-1}$ . Corrélée avec les fluctuations du signal de contrainte, la mesure ultrasonore de la vitesse de l'écoulement a été déterminée avec différentes résolutions temporelles de 0,01 s, 0,1 s et 1 s pour des durées d'acquisition respectivement de 2 s, 20 s et 200 s. Nous observons que pour des durées d'acquisition faibles, il n'y a pas ou peu d'oscillations des rouleaux et il persiste une corrélation spatiale au cours du temps tandis que sur des durées d'observation plus longues, il est impossible de suivre les oscillations désordonnées de l'écoulement. On peut alors qualifier cette turbulence de spatialement homogène mais de temporellement chaotique.

En dehors des solutions à base de polymères, il existe d'autres types de fluides viscoélastiques. Les solutions de micelles géantes en font partie. Le couplage entre l'écoulement et la microstructure de ces solutions génère le plus souvent des phénomènes de localisation du cisaillement et des écoulement hétérogène dont la stabilité et la dynamique temporelle et spatiale reste encore un sujet intensément étudié. Tournons-nous à présent vers l'étude de ces systèmes micellaires.

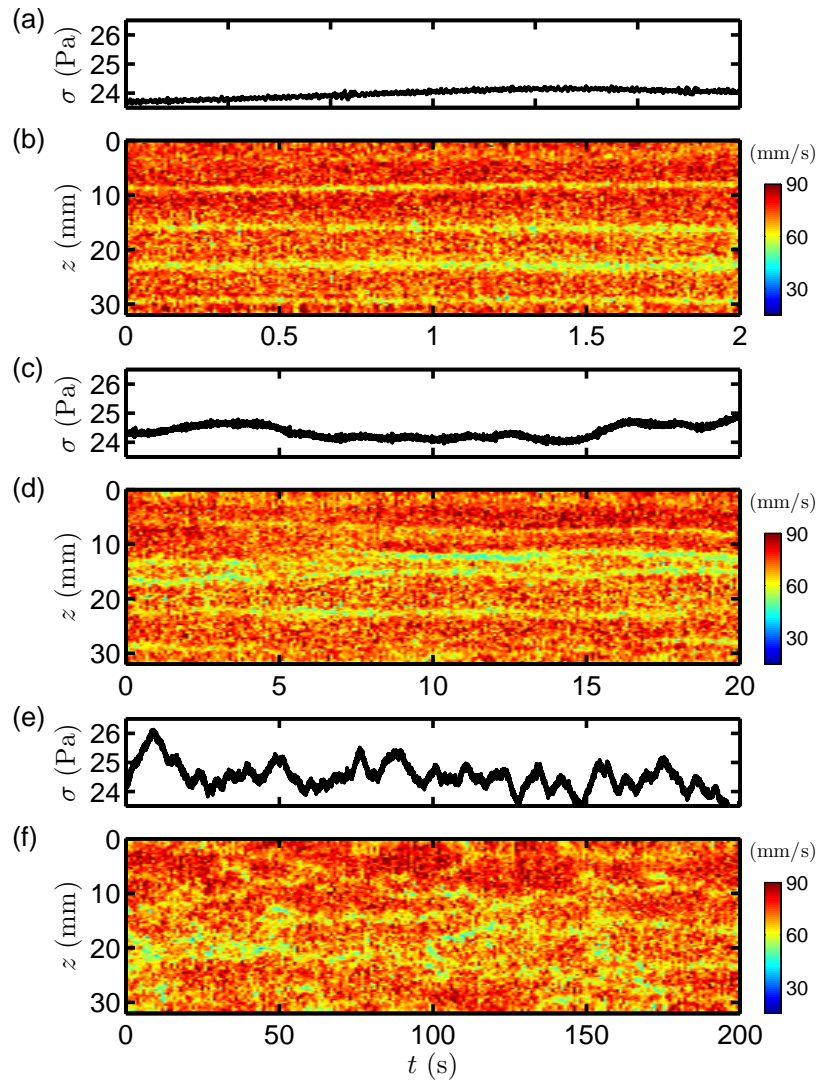


FIGURE 4.10 – Résolution de la turbulence dans une solution de PAAM à  $T=12^{\circ}\text{C}$  soumis à un écoulement à cisaillement imposé à  $\dot{\gamma} = 45 \text{ s}^{-1}$ . (a) (c) et (e) évolution temporelle du signal de contrainte. (b) (d) et (f) Diagramme spatio-temporel de la vitesse  $v(r_0, z, t)$  mesurée par vélocimétrie ultrasonore pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/4$  du rotor en utilisant un échantillon avec des billes de verre pour des résolutions temporelles respectives de 0,01 s, 0,1 s et 1 s.





# Chapitre 5

## Un fluide viscoélastique plus complexe : les micelles géantes

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Présentation</b>	<b>90</b>
<b>5.2</b>	<b>Régime semi-dilué</b>	<b>93</b>
5.2.1	Phénomène de bandes de cisaillement	93
5.2.2	Rhéologie linéaire et non-linéaire	97
5.2.3	Imagerie ultrasonore dans un système micellaire semi-dilué sous cisaillement	98
<b>5.3</b>	<b>Régime de concentration intermédiaire</b>	<b>108</b>
5.3.1	Une solution micellaire sans bande de cisaillement	109
5.3.2	Route vers la turbulence inertio-élastique	110
5.3.3	Étude de la bifurcation supercritique $CF \rightarrow SV$	112
5.3.4	Étude de la forme des « Standing Vortices »	113
5.3.5	Vers une étude statistique de la turbulence inertio-élastique	116
<b>5.4</b>	<b>Régime dilué</b>	<b>116</b>
5.4.1	Rhéologie non-linéaire et shear-induced structures	116
5.4.2	Dynamique spatio-temporelle de l'écoulement du CTAT	119
5.4.3	Temps de nucléation	121
5.4.4	Conclusion et diagramme de stabilité du CTAT	123

---

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à un deuxième type de fluide viscoélastique : les solutions micellaires. Ce système est composé de molécules de tensioactifs qui s'auto-assemblent en des structures plus longues et qui, en s'enchevêtrant à la manière des polymères, forment un réseau viscoélastique. La mise en écoulement de cette solution rhéofluidifiante induit des modifications structurelles au sein du fluide et conduit à des instabilités élastiques dont les dynamiques temporelle et spatiale ne sont pas encore toutes comprises. Ces dynamiques dépendent essentiellement de la nature et de la concentration de la solution. Ici, nous nous concentrons sur trois régimes de concentration : le régime semi-dilué, le régime dilué et un régime intermédiaire, et nous limitons notre étude à deux systèmes micellaires : une solution composée de bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB) et de nitrate de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ) et une solution composée d'hexadécyltriméthylammonium p-toluènesulfonate (CTAT).

## 5.1 Présentation

Une solution micellaire est composée de molécules de tensioactifs. Ces molécules amphiphiles sont caractérisées par deux parties de polarité différente : une tête polaire et hydrophile (et lipophobe) et une « queue » apolaire et hydrophobe (et lipophile). Un exemple de molécule tensioactive est représenté sur la figure 5.1(a). Comme le bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB), le chlorure de cetylpyridinium (CPCl) est composé d'une longue chaîne carboné qui constitue la queue apolaire et d'une extrémité chargée (ici un cycle aromatique) constituant la tête polaire. Dissout dans un solvant aqueux, et au-dessus d'une concentration micellaire critique, ces molécules vont s'assembler en formant des structures où les têtes polaires, à l'extérieur et en contact avec les molécules d'eau, protègent les parties hydrophobes situées à l'intérieur. Pour permettre aux structures micellaires de se développer, on ajoute généralement du sel qui, une fois en solution, introduit des ions qui écrantent les répulsions électrostatiques des têtes des molécules de tensioactifs. Dans le cas du CTAB, le sel ajouté est du nitrate de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ). On peut aussi ajouter du salicylate de sodium (NaSal). La structure ainsi formée dépend également de la température. En effet, en-dessous d'une certaine température, dite de Krafft, les molécules démangent, cristallisent et ne s'assemblent pas. La température de Krafft est de  $T_K \simeq 21^\circ\text{C}$  pour la solution micellaire :  $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ . C'est pourquoi la température du bain thermostaté est fixée à  $28^\circ\text{C}$  et  $30^\circ\text{C}$  dans nos expériences. Notons également que certaines molécules tensioactives, comme le CPCl, sont sensibles à la lumière et peuvent s'hydrolyser si on les expose trop longtemps aux rayons ultra-violetts [Fig.5.1(e)]. Le CTAB et le CTAT, quant à elles, ne présentent pas de photo-hydrolyse.

La structure micellaire formée dépend donc essentiellement des conditions de température, de concentration et de salinité. La plus étudiée est la structure vermiculaire (worm en anglais) où les molécules de tensioactifs en solution aqueuse s'organisent spontanément pour former de longs agrégats micellaires cylindriques semi-flexibles pouvant atteindre plusieurs micromètres de long pour un diamètre de l'ordre de la dizaine de nanomètres [Lerouge et Berret, 2010]. De tels assemblages sont connus dans la littérature sous le nom de *micelles géantes* et diverses revues récentes sont disponibles sur ce sujet [Berret, 2005; Cates et Fielding, 2006; Lerouge et Berret, 2010]. Ces matériaux

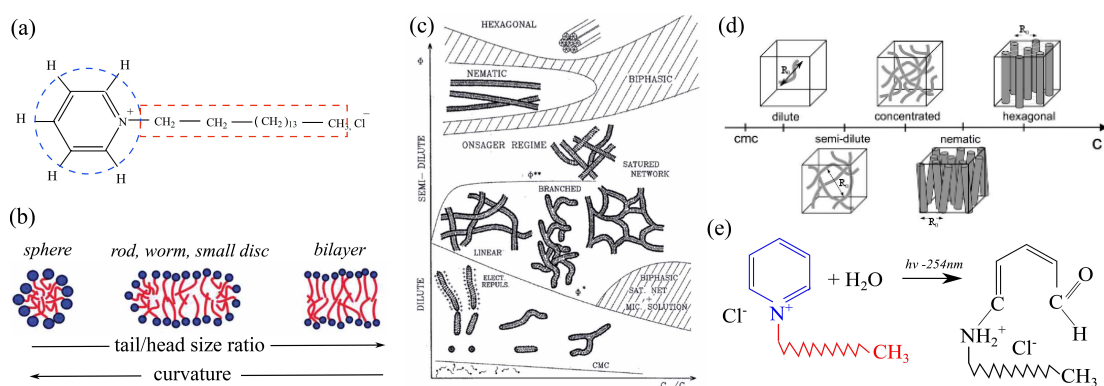


FIGURE 5.1 – **Des atomes aux structures micellaires dans des systèmes de tensioactifs.** (a) Exemple d'une molécule de tensioactif : le chlorure de cetylpyridinium (CPCl). (b) Différentes structures micellaires : sphérique, en forme de bâtonnets, cylindrique, ou en bicouche lorsqu'on augmente le rapport (longueur de la chaîne)/(taille de la tête). (c) Diagramme de phase schématisé montrant les différentes organisations structurales des micelles. L'axe vertical représente la fraction volumique des molécules amphiphiles ; l'axe horizontal est le rapport entre les concentrations en sel ajouté et tensioactif. (d) Diagramme de phase simplifié de la structure micellaire en fonction de la concentration en tensioactif. (e) Exemple de la sensibilité des tensioactifs à la lumière avec la photo-hydrolyse du CPCl. [Figure (b) tirée de [Cates et Fielding, 2006], (c) de [Hoffmann et al., 1994], (d) de [Lerouge et Berret, 2010], (e) de [Fardin et al., 2012a]]

sont abondamment utilisés dans l'industrie en tant que détergents par exemple [Yang, 2002].

Cependant, contrairement aux polymères dont la longueur est fixée par la chimie des molécules, les micelles géantes sont susceptibles de se couper et de se recombinaison en permanence sous l'effet de l'agitation thermique. Ainsi, comme nous le verrons dans le paragraphe 5.4 il est possible de passer d'une structure micellaire en forme de bâtonnets (« rod » en anglais) à une structure micellaire cylindrique sous l'effet d'un cisaillement. La figure 5.1(b) illustre les différentes structures formées en fonction du rapport entre la longueur de la chaîne et la taille de la tête. Notre étude se focalisera dans un premier temps sur les micelles géantes et dans un second temps sur des régimes plus dilués constitués de micelles en forme de bâtonnets.

La figure 5.1(c) montre la structure et l'organisation de ces micelles suivant la concentration en surfactant et en sel. Une version plus schématisée est donnée sur la figure 5.1(d) où l'on fixe la concentration en sel et on augmente la concentration en tensioactif. On peut alors définir plusieurs régimes de concentration :

- le régime dilué où les micelles, sous formes de bâtonnets, sont isolées les unes des autres. La longueur caractéristique est ici la longueur de persistance de la chaîne.
- le régime semi-dilué et concentré où les micelles cylindriques s'enchevêtrent et modifient considérablement les propriétés viscoélastiques du système. La longueur caractéristique est ici le paramètre de maille ou la distance entre enchevêtrements.
- le régime fortement concentré où les micelles s'ordonnent selon une phase nématique tout d'abord où règne un ordre orientationnel puis une phase hexagonale à plus forte concentration où les micelles présentent un ordre orientationnel et

translationnel à longue portée et sont positionnées de manière hexagonale. Nous allons à présent décrire un peu plus ces trois régimes.

### **Le régime dilué : structure induite par cisaillement (SIS)**

À faibles concentrations, de quelques centaines de ppm à environ 0,1-1 % en masse, les micelles géantes ont une longueur faible, elles n'interagissent pas et présentent essentiellement un comportement newtonien à faible taux de cisaillement avec une viscosité de quelques mPa.s proche de celle de l'eau [Lerouge et Berret, 2010]. Les micelles ont une forme de bâtonnets, on les appelle « rodlike micelles » en anglais. Cependant, au-delà d'un taux de cisaillement critique, un rhéo-épaississement significatif est souvent décrit dans ces systèmes dilués [Rehage et Hoffmann, 1982a; Hu et al., 1998c]. Ce comportement assez surprenant peut s'expliquer de la manière suivante. Sous l'effet du cisaillement, les micelles, initialement sous forme de bâtonnets (rodlike micelles), s'assemblent bout à bout pour former des structures plus longues et de forme cylindrique proches des micelles géantes (wormlike micelles). Cette structure est donc induite par cisaillement, on l'appelle « shear-induced structure » en anglais [Boltenhagen et al., 1997a; Berret et al., 2002]. Une étude sur une solution diluée d'hexadecyltriméthylammonium p-toluenesulfonate (CTAT) dans de l'eau est proposée dans le paragraphe 5.4.

### **Le régime semi-dilué et concentré : bandes de cisaillement et instabilités élastiques**

Dans les régimes semi-dilué et concentré, les micelles ont une taille plus grande. On les nomme alors « wormlike micelles ». De plus, ces micelles géantes s'enchevêtrent pour former un réseau viscoélastique. La gamme de concentration pour de tels régimes est typiquement de 0,1-1 % en masse à 10-20 % en masse. Les successions de cassure et de recombinaison de ces micelles leur confèrent des propriétés de viscoélasticité très particulières : ces systèmes possèdent généralement un seul temps de relaxation  $\tau_e \simeq 0.1-1$  s et suivent très bien le modèle de Maxwell avec un module élastique  $G_0 \simeq 10-100$  Pa (et donc une viscosité  $\eta_0 = G_0\tau_e \simeq 1-100$  Pa.s) [Berret, 2005; Cates et Fielding, 2006; Lerouge et Berret, 2010]. De plus, à ces concentrations et pour un taux de cisaillement bien choisi, le profil de vitesse mesuré peut présenter des bandes de cisaillement et des instabilités élastiques à plus haut  $\dot{\gamma}$ . Nous reviendrons plus en détail sur ces notions dans l'étude d'une solution semi-diluée de micelles géantes bien connue, constituée de bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB) de concentration 0,3 M et de nitrate de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ) de concentration 0,4 M dissout dans de l'eau distillée qui est présentée au paragraphe 5.2.

### **Le régime fortement concentré : micelles géantes avec une contrainte seuil**

Enfin, quand la concentration en tensioactif croît encore, les micelles géantes interagissent entre elles via des interactions stériques qui conduisent à l'émergence de phases nématiques et autres phases ordonnées typiques des cristaux liquides (hexagonale, cubique, etc.) [Lerouge et Berret, 2010]. Cette transition isotrope/nématique apparaît pour des concentrations autour de 20-30 % en masse. À ces concentrations, les micelles géantes peuvent avoir un comportement solide au repos et présenter une contrainte

seuil comme nous l'avons décrit aux paragraphes 1.2.5 et 1.3.3. Nous n'avons pas eu le temps nécessaire d'étudier ce genre de système mais il serait effectivement intéressant de se pencher sur ce régime hautement concentré et de comparer le comportement de ce fluide à seuil à ceux observés pour le microgel de carbopol ou l'émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau présentés dans l'annexe C ou encore le gel colloïdal de noir de carbone présenté au chapitre 7.

Dans la suite de ce chapitre, nous commençons par étudier le cas désormais bien connu d'une solution semi-diluée de micelles géantes constituée de bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB) de concentration 0,3 M et de nitrate de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ) de concentration 0,4 M dissout dans de l'eau distillée. Nous retrouvons alors les résultats de bandes de cisaillement ainsi que d'instabilités élastiques dans la bande fortement cisailée. Dans un second temps, nous nous focalisons sur ce même système micellaire mais à plus faible concentration ( $[\text{CTAB}]=0,1$  M et de  $[\text{NaNO}_3]=0,3$  M). Nous observons alors que le phénomène de bandes de cisaillement disparaît et que des instabilités inertio-élastiques émergent. Enfin, nous nous penchons sur une solution diluée de d'hexadecyltriméthylammonium p-toluenesulfonate (CTAT) dans de l'eau qui présente des structures induites sous cisaillement.

## 5.2 Régime semi-dilué

### 5.2.1 Phénomène de bandes de cisaillement

Dans le régime non-linéaire, aux faibles taux de cisaillement, les micelles géantes sont newtoniennes ou faiblement rhéo-fluidifiantes : comme les polymères classiques, elles s'étirent et s'alignent progressivement à mesure que  $\dot{\gamma}$  augmente. Toutefois, au-delà d'un certain taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ , les micelles se désenchevêtrent brutalement et s'alignent conduisant à un ordre quasiment nématique. Alors que cet état microscopique induit par le cisaillement est nématique dans les échantillons plus concentrés, la nature exacte de cette microstructure nouvelle reste floue dans les échantillons semi-dilués [Lerouge et Berret, 2010].

Cette instabilité est caractérisée par une portion de pente négative dans la courbe d'écoulement  $\sigma$  vs  $\dot{\gamma}$  [voir Fig.5.2(b)] et a été prédite théoriquement au début des années 1990 [Spensley et al., 1993]. Expérimentalement, la zone instable se traduit par un plateau de contrainte à une valeur fixée  $\sigma^*$  où la viscosité apparente de l'échantillon décroît comme  $\eta \sim \dot{\gamma}^{-1}$ . Ce plateau, mis en évidence pour la première fois par Rehage et Hoffmann [1991], sépare deux branches croissantes pour  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_l$  et  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_h$ . La figure 5.5(b), un peu plus loin, présente un exemple d'une telle courbe d'écoulement expérimentale montrant un plateau de contrainte pour une solution micellaire  $[\text{CTAB}]=0,3$  M,  $[\text{NaNO}_3]=0,4$  M.

Par analogie avec une transition de phase à l'équilibre du premier ordre où la branche à bas (respectivement haut) taux de cisaillement correspond à des micelles enchevêtrées (respectivement alignées), on s'attend à une *coexistence de phase* pour  $\dot{\gamma}_l < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_h$  sous la forme d'un écoulement hétérogène constitué de plusieurs régions cisailées localement avec les taux de cisaillement caractéristiques  $\dot{\gamma}_l$  et  $\dot{\gamma}_h$ . Le profil de vitesse attendu, représenté sur la figure 5.2(b), présente donc deux portions de droite. La portion de

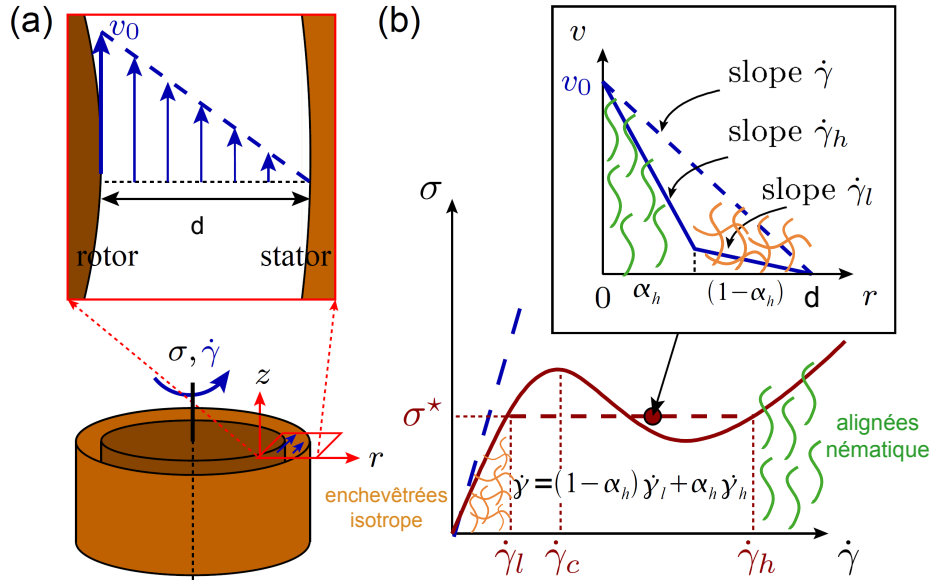


FIGURE 5.2 – **Comportement d’une solution micellaire présentant des bandes de cisaillement.** (a) Cisaillement en géométrie de Taylor-Couette. (b) Courbe d’écoulement  $\sigma$  vs  $\dot{\gamma}$  montrant un plateau en contrainte qui sépare deux branches : une branche newtonienne à faible taux de cisaillement où les micelles sont enchevêtrées, et une branche à haut taux de cisaillement où les micelles sont alignées. En insert : profil de vitesse  $v(r)$  attendu pour une solution de micelles géantes pour un taux de cisaillement appliqué dans la région du plateau en contrainte. Le profil en bandes de cisaillement est caractéristique de la coexistence de deux phases : une phase nématique (où les micelles sont alignées) dans la bande fluide fortement cisillée proche du rotor et une phase isotrope (où les micelles sont enchevêtrées) dans la bande visqueuse faiblement cisillée proche du stator. Les pointillés bleus indiquent le cas d’un fluide newtonien.

droite de pente  $\dot{\gamma}_h$ , proche du rotor (en  $r = 0$ ), correspond à une région fluide fortement cisillée où les micelles sont alignées tandis que la portion de droite de pente  $\dot{\gamma}_l$ , proche du stator (en  $r = d$ ), correspond à une région visqueuse faiblement cisillée où les micelles restent enchevêtrées. La proportion relative  $\alpha_h$  de la bande fluide est alors donnée par la loi du levier :

$$\dot{\gamma} = (1 - \alpha_h)\dot{\gamma}_l + \alpha_h\dot{\gamma}_h. \quad (5.1)$$

Ainsi, plus on augmente le taux de cisaillement, qui est ici notre paramètre de contrôle, plus la taille de la bande fluide sera élevée jusqu’à ce qu’elle envahisse l’ensemble de l’entrefer.

Un tel écoulement en bande de cisaillement a été clairement mis en évidence en géométrie de Taylor-Couette cylindrique il y a une dizaine d’années grâce à l’utilisation de techniques de vélocimétrie sondant localement le champ de vitesse lors d’expériences de rhéologie [Salmon et al., 2003b]. Auparavant, des mesures de biréfringence ont été effectuées sur des solutions micellaires concentrées constituées de chlorure de cetylpyridinium (CPCl) et d’hexanol (Hex) dans de l’eau [Berret, 2005]. À partir d’une lumière polarisée envoyée au travers de l’échantillon suivant la direction verticale  $z$  de la cellule de Taylor-Couette, la différence  $\Delta n$  entre les indices ordinaire et extraordinaire ainsi

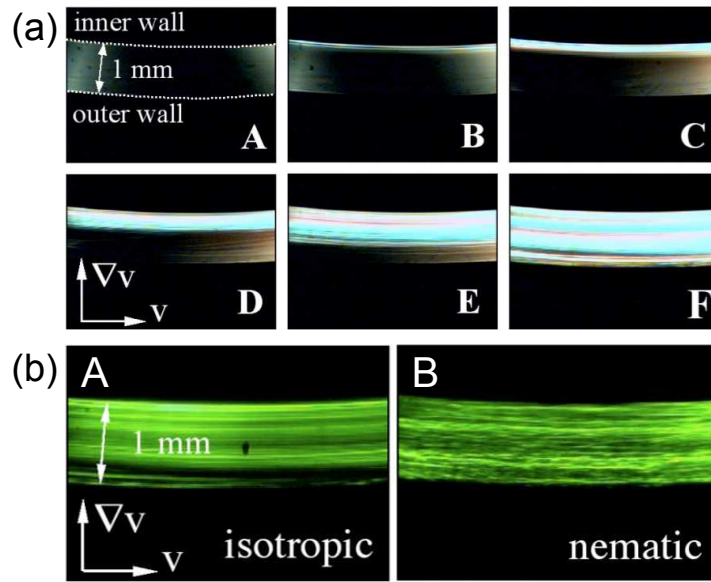


FIGURE 5.3 – **Observation par biréfringence du phénomène de bandes de cisaillement.** (a) Expérience de biréfringence dans une cellule de Taylor-Couette d’entrefer 1 mm contenant une solution de CPCI-Hex de concentrations  $[\text{CPCI}]=28,0\%$  en masse et  $[\text{Hex}]=3,9\%$  en masse. De (A) à (F), le taux de cisaillement est augmenté. Les photographies (A) et (F) correspondent à la branche à bas et à haut taux de cisaillement respectivement. Les photographies (B) à (E) sont prises dans la zone de coexistence de phase. Le polariseur et l’analyseur sont orientés de telle sorte que la bande proche du cylindre extérieur apparaît noire. En augmentant le taux de cisaillement, la bande nématique brillante envahit progressivement l’ensemble de l’entrefer. (b) Comparaison de deux solutions de CPCI-Hex soumise à un cisaillement. La solution (A) ( $[\text{CPCI}]=28,0\%$  et  $[\text{Hex}]=3,9\%$ ) est isotrope au repos. La photographie est prise pour  $\dot{\gamma} = 220 \text{ s}^{-1}$  qui correspond à la branche de haut taux de cisaillement. La solution (B) ( $[\text{CPCI}]=29,1\%$  et  $[\text{Hex}]=4,1\%$ ) est nématique au repos. La photographie est prise pour un taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 8,9 \text{ s}^{-1}$ . Figures tirées de Berret [2005].

que l’angle  $\chi$  d’extinction (angle entre l’axe principal du tenseur de l’indice de réfraction et la direction de la vitesse d’écoulement) sont mesurés. La figure 5.3(a) montre six photographies de l’échantillon placé dans un entrefer de 1 mm dans une cellule de Taylor-Couette soumis à différents taux de cisaillement. Le polariseur et l’analyseur sont orientés de telle sorte que l’angle d’extinction corresponde à un taux de cisaillement nul. La solution apparaît donc noire au repos. Pour les photographies (A) à (F), le taux de cisaillement est augmenté. Sur les photographies (A) et (F), prises respectivement pour des taux de cisaillement correspondant à la branche newtonienne à faible  $\dot{\gamma}$  et la branche à haut  $\dot{\gamma}$ , la biréfringence est homogène et la différence d’indice  $\Delta n$  passe de  $-10^{-5}$  à  $-10^{-3}$ . Pour les photographies (B) à (E), le taux de cisaillement imposé correspond à la région du plateau en contrainte. On observe alors une coexistence entre deux bandes de  $\Delta n$  différents. Plus le taux de cisaillement est grand plus la taille de la phase brillante, induite par l’écoulement est importante jusqu’à envahir l’ensemble de l’entrefer en (F). Dans le but de confirmer que la phase induite par l’écoulement, correspond bien à une phase ordonnée dite nématique, Berret [2005] a comparé la biréfringence sous cisaillement de deux solutions de CPCI-Hex de concentrations voisines, mais dont



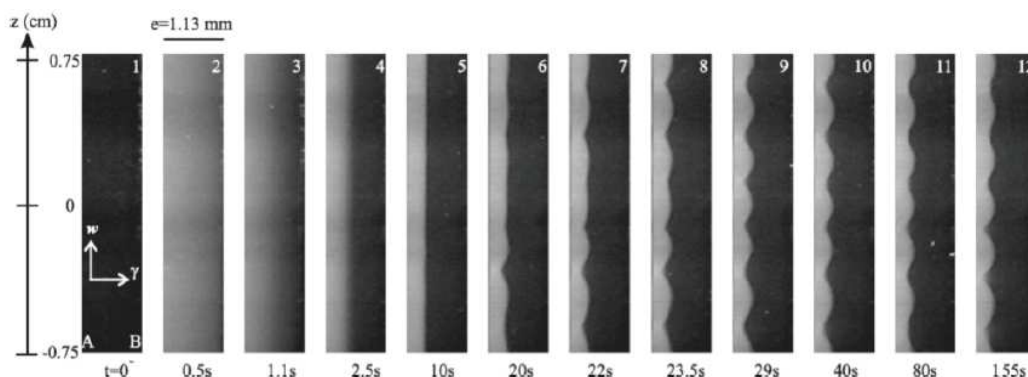


FIGURE 5.4 – Observation dans le plan  $(r, z)$  de la diffusion de la lumière d'une nappe laser par une solution de CTAB- $\text{NaNO}_3$  (concentration 0,3 M-0,405 M) sous cisaillement. Les lettres A et B indiquent respectivement la position du cylindre intérieur tournant et du cylindre extérieur fixe. Les images enregistrées à différents instants montrent la mise en place de l'instabilité élastique dans la bande induite lorsqu'on soumet l'échantillon à un démarrage d'écoulement à  $\dot{\gamma} = 30 \text{ s}^{-1}$ . Figure tirée de Lerouge et al. [2006a].

l'organisation micellaire diffère au repos. La figure 5.3(b)(A) illustre la biréfringence d'un fort cisaillement d'une solution isotrope au repos et la compare à celle obtenue pour un faible cisaillement d'une solution nématique au repos [voir Fig.5.3(b)(B)]. Ces expériences montrent que la lumière transmise et par conséquent la biréfringence  $\Delta n$  sont similaires et par conséquent il est possible de conclure que la bande induite par le cisaillement correspond bien à une phase nématique. Notons ici que la structure de la phase induite par le cisaillement a également été caractérisée par des mesures de diffusion de neutrons [Cappelaere et al., 1997b; Berret, 2005] et des mesures de spectroscopie de résonance magnétique nucléaire (RMN) [Fischer et Callaghan, 2000; Callaghan, 2008].

Le scénario décrit ci-dessus est désormais bien établi expérimentalement et expliqué théoriquement dans de nombreuses solutions de micelles géantes, du moins lorsqu'on considère l'écoulement moyen en régime permanent. Toutefois, depuis quelques années, des approches résolues en temps ont montré que les bandes de cisaillement s'accompagnent fréquemment de *fluctuations* importantes du champ de vitesse [Bécu et al., 2004, 2007]. Grâce à des mesures rhéo-optiques, l'équipe de Sandra Lerouge au Laboratoire Matière et Systèmes Complexes a pu expliquer ces fluctuations comme émanant d'une instabilité élastique dans la phase « alignée » [Fardin et al., 2009]. Alors que c'est la force d'inertie centrifuge qui est le moteur de l'instabilité de Taylor-Couette dans un fluide simple, l'instabilité élastique est engendrée par les forces normales centripètes qui s'exercent le long des lignes de courant courbées [Pakdel et McKinley, 1996]. Dans le cas d'un écoulement en bandes de cisaillement, l'instabilité se développe uniquement dans la région fortement cisailée. Il s'ensuit un écoulement très particulier où les rouleaux élastiques de type Taylor déforment l'interface entre les deux bandes de cisaillement. La figure 5.4 tirée de Lerouge et al. [2006a], montre la mise en place de l'instabilité élastique dans la bande fluide induite par l'écoulement pour un démarrage d'écoulement à  $\dot{\gamma} = 30 \text{ s}^{-1}$ . L'ondulation de l'interface séparant les deux bandes montre la création de rouleaux élastiques.

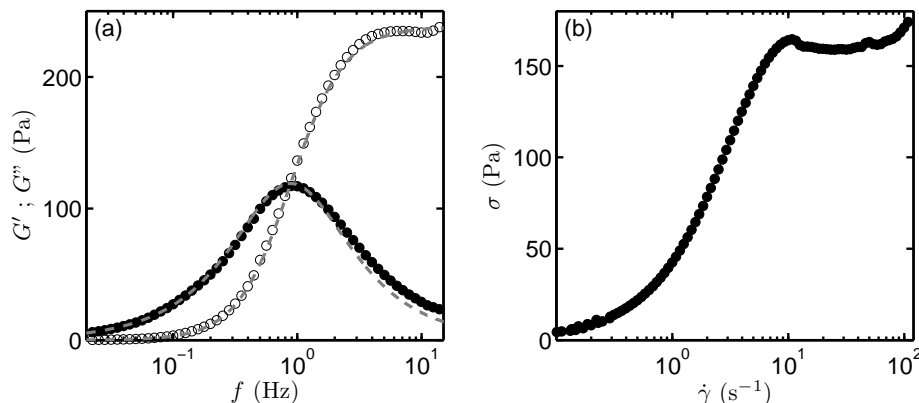


FIGURE 5.5 – Courbes de rhéologie standard d’une solution semi-diluée de micelles géantes ( $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ ) dans laquelle on a rajouté des billes de verre creuses de concentration 1% en masse. (a) Modules viscoélastique  $G'$  (o) et  $G''$  (●) en fonction de la fréquence d’oscillation  $f$  pour une amplitude de déformation de 1%. Les lignes en pointillés gris correspondent à un comportement Maxwellien avec  $G_0 = 238 \text{ Pa}$  et  $\tau_s = 0,18 \text{ s}$ . (b) Courbe d’écoulement  $\sigma$  en fonction de  $\dot{\gamma}$  obtenue en augmentant progressivement le taux de cisaillement selon un échantillonnage logarithmique (5 s par point et moyenné sur les deux dernières secondes). Ces mesures ont été réalisées avec une géométrie cône-plan (diamètre 40 mm et angle  $2^\circ$ ) à  $T = 30^\circ\text{C}$ .

### 5.2.2 Rhéologie linéaire et non-linéaire

Dans cette partie, nous étudions une solution semi-diluée de micelles géantes bien connue constituée de bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB) de concentration 0,3 M et de nitrate de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ) de concentration 0,4 M dissout dans de l’eau distillée. Dans ce paragraphe, la température a été fixée à  $T = 28$  ou  $30^\circ\text{C}$  ( $\pm 0,1^\circ\text{C}$ ) suivant les expériences. Il a été montré que le comportement de ce système de tensioactif ne varie pas trop entre ces deux températures Fardin et al. [2012b]; Lerouge et al. [2006b]; Fardin et al. [2008]. Ce système étant transparent acoustiquement, nous avons ajouté des agents de contraste dans la solution : 1 % en masse de billes de verre creuses polydisperses (Potters Sphericel, diamètre moyen  $6 \mu\text{m}$ , densité moyenne  $1,1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ). L’ajout de ces sphères ne modifie pas de manière significative les propriétés rhéologiques de l’échantillon. Les mesures viscoélastiques dans le régime linéaire illustrées sur la figure 5.5(a) montrent que les modules viscoélastiques suivent le modèle de Maxwell. Un tel comportement est attendu pour ces solutions semi-diluée de micelles géantes [Berret, 2005; Cates et Fielding, 2006]. Les valeurs estimées de  $G_0$  et de  $\tau$  sont en accord avec la littérature [Fardin et al., 2012b; Lerouge et al., 2006b; Fardin et al., 2008]. En effet, on note que le module élastique et le temps de relaxation sont respectivement de :  $G_0 = 238 \text{ Pa}$  et  $\tau_s = 0,18 \text{ s}$  à  $T = 30^\circ\text{C}$ , et  $G_0 = 239 \text{ Pa}$  et  $\tau_s = 0,25 \text{ s}$  à  $T = 28^\circ\text{C}$ .

La courbe d’écoulement réalisée sur cette solution semi-diluée de micelles géantes ( $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ ) et tracée sur la figure 5.5 pour  $T = 30^\circ\text{C}$  présente un plateau en contrainte à  $\sigma^* \simeq 160 \text{ Pa}$  qui s’étend de  $\dot{\gamma}_l \simeq 10 \text{ s}^{-1}$  jusqu’à  $\dot{\gamma}_h \simeq 120 \text{ s}^{-1}$  ce qui est en accord avec les travaux réalisés précédemment sur ce système.

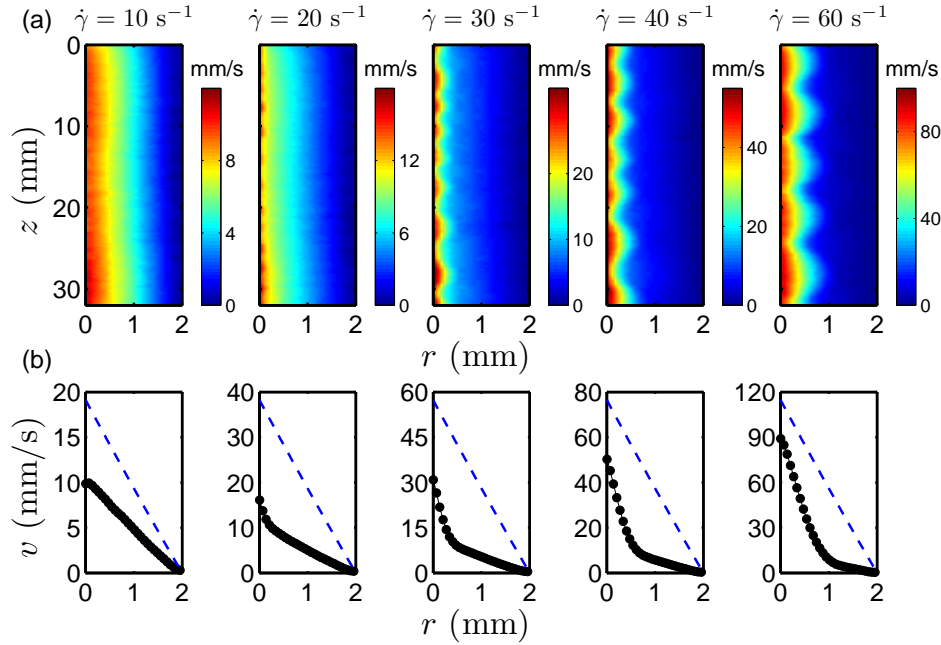


FIGURE 5.6 – États stationnaires à différents taux de cisaillement d’une solution semi-diluée de micelles géantes. (a) Cartes bidimensionnelles du champs de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_t$  moyennés en temps pour différents taux de cisaillement imposés par le rhéomètre et indiqués en haut de chaque image.  $r$  correspond à la distance radiale au cylindre intérieur en rotation et  $z$  correspond à la direction verticale orientée vers le bas, l’origine  $z = 0$  étant à environ 6 mm du haut de la cellule de Taylor-Couette. Les moyennes ont été effectuées sur 8000 tirs consécutifs une fois l’état stationnaire établi (typiquement 120 s après le démarrage de l’expérience). L’intervalle de temps entre deux tirs consécutifs dépend de  $\dot{\gamma}$  et est donné par  $1/(50\dot{\gamma})$  donc la durée sur laquelle on moyenne décroît de 16 s pour  $10 \text{ s}^{-1}$  à 2.7 s pour  $60 \text{ s}^{-1}$ . (b) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_{z,t}$  moyennés sur toute la hauteur de la sonde et sur le même intervalle de temps qu’en (a). La ligne en pointillés bleus montre les profils de vitesse théoriques attendus pour un fluide newtonien dans le régime laminaire. ( $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ , 1% de billes de verre,  $T = 30^\circ\text{C}$ ).

Ce plateau est la signature de l’écoulement en bandes de cisaillement. Nous allons à présent utiliser la technique d’imagerie ultrasonore, décrite au chapitre 2 afin de visualiser les bandes de cisaillement ainsi que les instabilités élastiques et la turbulence élastique qui peuvent se développer au sein de ce système micellaire semi-dilué.

### 5.2.3 Imagerie ultrasonore dans un système micellaire semi-dilué sous cisaillement

#### Écoulement moyenné en temps dans le régime stationnaire des bandes de cisaillement

Lorsqu’on applique un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_l < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_h$  correspondant au plateau en contrainte, il est bien connu que la solution micellaire ( $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ ) présente des bandes de cisaillement [Fardin et Lerouge, 2012; Fardin et al., 2008]. La figure 5.6(a) montre les cartes du champ de vitesse moyennés en temps obtenues

pour différents taux de cisaillement appliqués allant de  $10 \text{ s}^{-1}$  à  $60 \text{ s}^{-1}$  une fois l'état stationnaire atteint. Nous pouvons également vérifier sur la figure 5.11(a) que l'écoulement reste stationnaire dans cette gamme de taux de cisaillement et que la moyenne en temps est justifiée. Lorsqu'on moyenne ensuite sur toute la hauteur de la sonde ultrasonore, nous obtenons des profils de vitesses moyennés en temps et en espace [Fig.5.6(b)] qui montrent en effet des bandes de cisaillement. On remarque également un glissement notable à la paroi du rotor (jusqu'à 60% à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ ) comme il a été décrit dans d'autres expériences utilisant des conditions aux bords lisses [Fardin et Lerouge, 2012; Lettinga et Manneville, 2009; Fardin et al., 2012a].

### Analyse détaillée des profils de vitesse

Plus précisément l'analyse détaillée des profils de vitesse illustrée sur la figure 5.7 montre que le système présente une *loi du levier standard* :

- i) la proportion  $\alpha_h$  de la bande de haut taux de cisaillement à l'intérieur de l'entrefer de la cellule de Taylor-Couette augmente linéairement avec le taux de cisaillement global et de manière équivalente avec le nombre de Weissenberg global  $Wi = \tau_s \dot{\gamma}$  [Fig.5.7(a)].  $\alpha_h$  est obtenu par une interpolation linéaire par morceaux des profils de vitesse moyennés dans l'espace selon  $z$  et dans le temps une fois le régime stationnaire établi. La ligne en pointillés de la figure 5.7(a) représente la meilleure interpolation linéaire de ces données :  $\alpha_h = (Wi - Wi_l)/(Wi_h - Wi_l)$ . On trouve  $Wi_l \simeq 1,4$  et  $Wi_h \simeq 20,1$ .
- ii) la valeur du taux de cisaillement local  $\dot{\gamma}_l \simeq 6 \text{ s}^{-1}$  dans la bande de faible taux de cisaillement reste constante tout le long du régime de bande de cisaillement. Si l'on tient compte du glissement au rotor, elle correspond au début du plateau de la courbe d'écoulement  $\dot{\gamma}_l = 10 \text{ s}^{-1}$ . De ce fait, le nombre de Weissenberg local  $Wi_l = \tau_s \dot{\gamma}_l$  dans la bande faiblement cisailée est constant [Fig.5.7(c)].
- iii) le taux de cisaillement local dans la bande de haut taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_h$  (et par conséquent le nombre de Weissenberg local  $Wi_h = \tau_s \dot{\gamma}_h$  dans la bande fortement cisailée) n'est pas constant et augmente avec le nombre de Weissenberg global jusqu'à ce que la valeur prédite par la loi du levier soit atteinte :  $\dot{\gamma}_h \simeq 110 \text{ s}^{-1}$  qui correspond à la fin du plateau de la courbe d'écoulement  $\dot{\gamma}_h = 120 \text{ s}^{-1}$  si l'on prend en compte le glissement au rotor [Fig.5.7(c)].
- iv) L'augmentation importante de  $Wi_h$  est corrélée à une forte décroissance de la vitesse de glissement qui passe de 60% de la vitesse du rotor au début du plateau à environ 30% pour  $Wi > 10$  [Fig.5.7(b)].

Ces résultats sont en parfait accord avec les mesures uni-dimensionnelles réalisées précédemment sur le même système [Fardin et Lerouge, 2012]. Cependant, grâce à l'imagerie bi-dimensionnelle, on peut mettre clairement en évidence l'instabilité élastique qui se met en place dans la bande de haut taux de cisaillement [Fig.5.6(a)]. En effet, les cartes du champ de vitesse présentent des oscillations verticales localisées dans la bande fortement cisailée et ce quel que soit le taux de cisaillement global appliqué à l'échantillon du moment que l'on reste dans le régime de bandes de cisaillement. Ces oscillations sont la signature de rouleaux contra-rotatifs élastiques (qui ressemblent aux rouleaux de Taylor inertiel dans un fluide newtonien, voir le paragraphe 3.2.2) localisés dans la bande fortement cisailée et dus à une instabilité élastique comme l'a montré

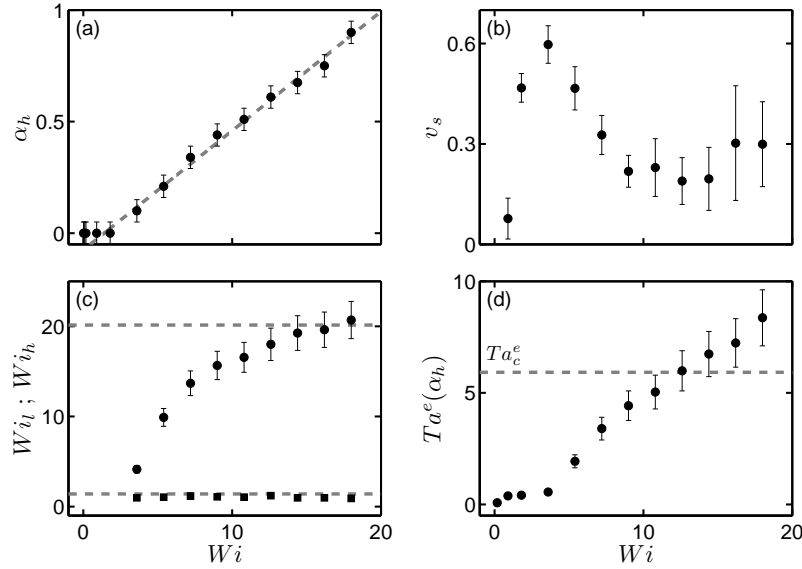


FIGURE 5.7 – Analyse des profils de vitesses moyennés dans le temps et dans l’espace dans le régime de bandes de cisaillement. (a) Proportion  $\alpha_h$  de l’entrefer occupé par la bande fortement cisailée en fonction du nombre de Weissenberg  $Wi = \tau_s \dot{\gamma}$ .  $\alpha_h$  est obtenu par une interpolation linéaire par morceaux des profils de vitesse moyennés dans l’espace selon  $z$  et dans le temps une fois le régime stationnaire établi. La ligne en pointillés représente la meilleure interpolation linéaire de ces données,  $\alpha_h = (Wi - Wi_l)/(Wi_h - Wi_l)$ , avec  $Wi_l \simeq 1,4$  et  $Wi_h \simeq 20,1$ . Les barres d’erreur sont de  $\pm 100 \mu\text{m}$ . (b) Vitesse de glissement moyennée au voisinage du rotor et adimensionnée  $v_s \equiv (v_0 - v(0))/v_0$ , où  $v_0$  est la vitesse imposée au rotor et  $v(0)$  est la vitesse du fluide mesurée au voisinage immédiat du rotor, en fonction de  $Wi$ . La moyenne est prise selon  $z$  et dans le temps. Les barres d’erreur représentent la déviation standard. (c) Nombres de Weissenberg locaux dans les bandes faiblement cisailée ( $Wi_l \equiv \tau_s \dot{\gamma}_l$ ) et fortement cisailée ( $Wi_h \equiv \tau_s \dot{\gamma}_h$ ) obtenus à partir des interpolations des profils de vitesse moyens. Les barres d’erreur sont données par les incertitudes expérimentales des mesures de vitesse. Les lignes en pointillés représentent les valeurs de  $Wi_l \equiv \tau_s \dot{\gamma}_l$  et  $Wi_h \equiv \tau_s \dot{\gamma}_h$  trouvées en (a). (d) Valeur locale du nombre de Taylor viscoélastique évalué dans la bande fortement cisailée  $Ta^e(\alpha_h) = \sqrt{\alpha_h(\dot{\gamma})d/R_i \tau_s \dot{\gamma}_h(\dot{\gamma})}$ . La ligne en pointillés montre le seuil de l’instabilité élastique à partir du modèle de Maxwell (voir paragraphe 1.2.7) avec des conditions aux bords durs Larson et al. [1990]. ([CTAB]=0,3 M, [NaNO<sub>3</sub>]=0,4 M, 1% de billes de verre,  $T = 30^\circ\text{C}$ )

l’équipe de Sandra Lerouge [Fardin et Lerouge, 2012].

### Forme des rouleaux de Taylor élastiques

Ici, l’imagerie ultrasonore bidimensionnelle de l’écoulement nous permet d’aller un cran plus loin et d’étudier plus en détail la structure des rouleaux. En effet, comme nous l’avons fait pour les rouleaux de Taylor dans le cas newtonien (Fig.3.11), en réalisant deux expériences différentes au même taux de cisaillement mais dans des sens de rotation opposés  $+\dot{\gamma}$  et  $-\dot{\gamma}$ , on peut combiner les deux mesures de vitesse correspondantes  $v_+$  et  $v_-$  pour retrouver les deux composantes horizontales de l’écoulement  $v_\theta$  et  $v_r$  en

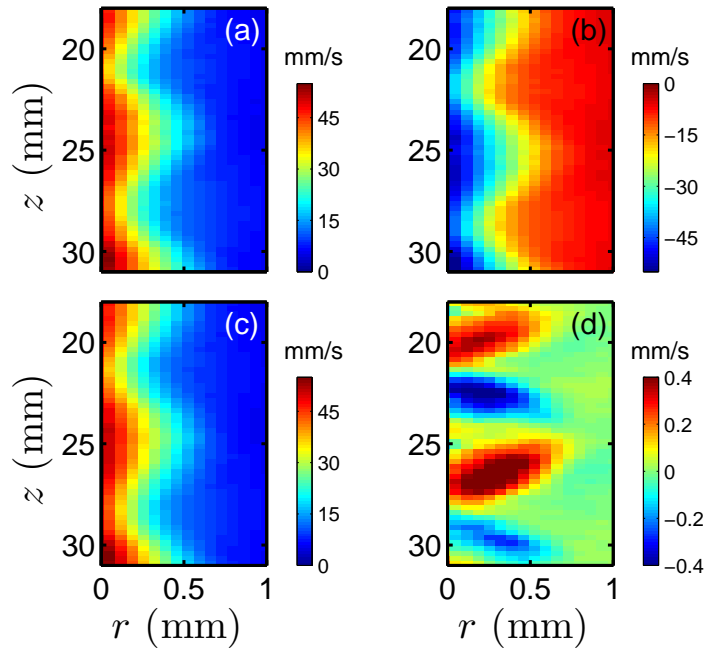


FIGURE 5.8 – Agrandissements d’images de vitesses moyennées en temps, enregistrées dans le régime des bandes de cisaillement. (a)  $\langle v_+(r, z, t) \rangle_t$  et (b)  $\langle v_-(r, z, t) \rangle_t$  ont été obtenus pour des taux de cisaillement opposés  $\dot{\gamma} = +40 \text{ s}^{-1}$  et respectivement  $\dot{\gamma} = -40 \text{ s}^{-1}$ . Les moyennes ont été effectuées sur 8000 tirs consécutifs séparés de 0,5 ms une fois l’état stationnaire établi (typiquement 120 s après le démarrage de l’expérience). (c) Cartes du champ de vitesse azimutale  $\langle v_\theta(r, z, t) \rangle_t$  et (d) radiale  $\langle v_r(r, z, t) \rangle_t$  obtenues à partir de (a) et (b) comme expliqué dans le texte. ([CTAB]=0,3 M, [NaNO<sub>3</sub>]=0,4 M, 1% de billes de verre,  $T = 30^\circ\text{C}$ ).

utilisant  $v_\theta = (v_+ - v_-)/2$  et  $v_r = \tan \phi (v_+ + v_-)/2$ .

Bien évidemment, cette procédure basée sur deux expériences indépendantes dépend du fait que les motifs de rouleaux contra-rotatifs doivent être localisés au même endroit dans les deux expériences, ce qui n’est pas toujours le cas à cause de la sensibilité aux conditions initiales. De plus, comme on peut le voir sur la figure 5.6(a), la longueur d’onde du motif n’est pas parfaitement uniforme le long de la cellule de Taylor-Couette. Ce défaut peut être attribué à des effets de bords, le haut et le bas de la cellule de Taylor-Couette n’ont pas tout à fait les mêmes conditions limites. La figure 5.8 illustre un cas où la disposition des rouleaux coïncide dans les deux sens de rotation :  $v_+$  et  $v_-$  [voir Fig.5.8(a) et (b)] ce qui permet d’estimer  $v_\theta$  et  $v_r$  sans avoir besoin de décaler artificiellement la position verticale des rouleaux. Les figures 5.8(c) et (d) confirment qu’à chaque longueur d’onde des ondulations observées dans la direction verticale sur la carte du champ de vitesse, correspond une paire de rouleaux contra-rotatifs. Ces mesures montrent également que l’écoulement de base initial, qui est purement azimutal et verticalement homogène, est fortement affecté par l’écoulement secondaire non seulement à travers une composante radiale  $v_r$ , mais aussi à travers une forte perturbation azimutale  $\delta v_\theta$ . En effet les perturbations locales  $\delta v_\theta$  peuvent atteindre  $15 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$  [voir Fig.5.8(c)], c’est-à-dire environ 30% de la vitesse de base  $v_\theta$ . Cette perturbation selon  $\theta$  est donc environ 30 fois plus importante que le maximum

des vitesses radiales relevé à environ  $0,5 \text{ mm.s}^{-1}$  [voir Fig.5.8(d)].

De plus, une forte asymétrie dans la carte du champ de vitesse radial est aussi mise en évidence sur la figure 5.8(d). En effet, on remarque qu'en partant du rotor, les régions de vitesse  $v_r$  positive (respectivement négative) pointent vers le haut (respectivement vers le bas). Nous avons vérifié que cette structure asymétrique est observée pour tous les taux de cisaillement appliqués dans le régime de bandes de cisaillement. Par conséquent, cette asymétrie ne peut être attribuée à une seconde instabilité qui apparaîtrait loin du seuil de la première instabilité. Jusqu'ici, une telle structure asymétrique n'a jamais été décrite dans la littérature que ce soit pour un fluide newtonien ou pour des polymères. Pour des fluides newtoniens soumis à une rotation du cylindre intérieur uniquement, les régions où l'écoulement est centrifuge sont légèrement plus intenses que les régions où l'écoulement est centripète [[Tagg, 1994] et Fig.3.11]. Dans les solutions de polymères qui mènent à des instabilités purement élastiques, l'écoulement centripète est bien plus important que l'écoulement centrifuge comme nous avons pu le vérifier sur les profils caractéristiques des « diwhirl dans le chapitre précédent » [Groisman et Steinberg, 1997]. Mais dans les deux cas, les écoulements centrifuges et centripètes ne montraient pas d'asymétrie telle qu'on l'observe ici pour cette solution de micelles géantes. Comprendre si cette particularité est inhérente à la présence d'une interface molle entre les deux bandes cisillées ou si c'est une caractéristique des écoulements élastiquement instables des fluides micellaires reste une question ouverte et doit être posée à la fois théoriquement et expérimentalement.

Tournons-nous à présent vers l'étude de la figure 5.7(d).

### **Comparaison du seuil expérimental de l'instabilité avec le modèle théorique de Larson et al. [1990]**

Sur la figure 5.7(d), nous avons calculé le nombre de Taylor élastique dans la bande instable :  $Ta^e(\alpha_h) = \sqrt{d\alpha_h/R_i} Wi_h$ , où  $Wi_h \equiv \tau_s \dot{\gamma}_h(\dot{\gamma})$  [Fardin et al., 2011] et nous l'avons comparé au modèle théorique établi par Larson et al. [1990].

Le premier modèle théorique décrivant une instabilité purement élastique a été proposé par Larson et al. [1990] pour des fluides viscoélastiques suivant le modèle de Maxwell. Par l'étude de la stabilité linéaire de ce modèle, dans la limite des petits entrefers et pour des nombres de Reynolds  $Re$  et de Taylor inertiel  $Ta$  tendant vers 0, Larson a prédit une instabilité linéaire de l'écoulement de base pour un nombre de Weissenberg  $Wi_c$  critique Larson et al. [1990]. Ce nombre définit initialement comme  $Wi \equiv \tau_s \dot{\gamma}$  est également lié à la première différence de contraintes normales à la contrainte tangentielle. Dans le cas d'une géométrie de Taylor-Couette, il peut s'écrire de la manière suivante :

$$Wi = \frac{N_1}{\sigma} = \frac{\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{rr}}{\sigma_{\theta r}} \quad (5.2)$$

où  $N_1$  est la première différence de contraintes normales,  $\sigma$  la contrainte tangentielle. Cette relation semble être valable au premier ordre pour tous les systèmes micellaires présentés dans ce chapitre [Fardin et al., 2011]. Elle a été vérifiée en particulier sur le système [CTAB]=0,1 M et [NaNO<sub>3</sub>]=0,3 M au paragraphe 5.3.1. Le seuil critique de l'instabilité a été prédit par Larson, Shaqfeh et Mueller, pour un fluide de Maxwell.

L'écoulement est instable élastiquement si :

$$\sqrt{\frac{d}{R_i}} Wi > Ta_c^e \quad (5.3)$$

où  $Ta_c^e = \sqrt{\frac{d}{R_i}} Wi_c = 5,92$  représente le nombre de Taylor élastique critique au-delà duquel l'écoulement devient instable élastiquement. Notons que le caractère rhéofluidifiant est supposé abaisser le seuil de l'instabilité [Larson et al., 1994b].

Clairement, la prédiction théorique du seuil pour un modèle de Maxwell avec des conditions aux limites dures [Larson et al., 1990] ne coïncide pas avec les données puisqu'on a montré précédemment que l'écoulement en bande de cisaillement pouvait être instable en dessous de ce seuil. En effet, dans nos expériences, la bande induite par le cisaillement proche du stator a pour conditions aux limites, la paroi solide du cylindre intérieur d'un côté, et la bande de faible taux de cisaillement de l'autre. Comme il a été montré par Fardin et al. [2012b], la présence de cette interface molle entre la bande instable de haut taux de cisaillement et la bande stable de bas taux de cisaillement influence la dynamique spatio-temporelle de l'écoulement en rouleaux. Dans une approximation au premier ordre, cette interface molle a un impact sur le seuil de l'instabilité élastique [Fardin et al., 2011]. En effet, l'analyse de stabilité linéaire donne  $Ta_c^e = 5,92$  dans le cas du modèle de Maxwell [Larson et al., 1990] avec des conditions aux bords dures où les limites de l'entrefer sont des parois solides et comme le montre la figure 5.7(d), l'écoulement est instable en dessous de ce seuil.

Penchons-nous à présent sur la dynamique d'établissement de cette instabilité élastique dans la bande fortement cisailée.

### Démarrage d'écoulement et mesures transitoires dans le régime des bandes de cisaillement

Les capacités de haute résolution temporelle de notre technique d'imagerie ultrasonore sont illustrées sur la figure 5.9. En imposant un démarrage d'écoulement à un taux de cisaillement correspondant environ au milieu du plateau en contrainte :  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ , nous pouvons résoudre temporellement la mise en place de l'écoulement jusqu'à son état stationnaire (voir aussi la vidéo supplémentaire 9). Aux temps courts ( $t \lesssim 10 \text{ s}$ ), l'écoulement reste homogène sur toute la hauteur de la cellule de Taylor-Couette. Les profils de vitesse moyennés selon la direction verticale  $z$  montrent la séparation radiale progressive de l'écoulement en deux bandes : une bande fortement cisailée proche du rotor correspondant à l'état aligné et une bande faiblement cisailée proche du stator correspondant à l'état enchevêtré [voir Fig.5.9(c)].

De plus, l'échantillonnage rapide de la technique utilisée ici (donnant lieu à une résolution temporelle de 0,4 s voir la vidéo supplémentaire 9) nous permet de visualiser la croissance de l'instabilité élastique qui se développe dans la bande fortement cisailée (pour  $r \lesssim 1 \text{ mm}$ ). En effet, pour  $t \gtrsim 30 \text{ s}$ , la symétrie verticale est brisée et l'interface entre les deux bandes oscille le long de la direction  $z$  tandis que le profil de vitesse de la bande faiblement cisailée n'est pas affecté [voir insert de la figure 5.9(c)]. Ceci correspond à l'apparition et à la croissance de l'instabilité élastique dans la bande de haut taux de cisaillement qui conduit finalement à l'état stationnaire décrit au paragraphe précédent. Enfin notons qu'à l'instar des rouleaux de Taylor dans de l'eau [Taylor, 1936]



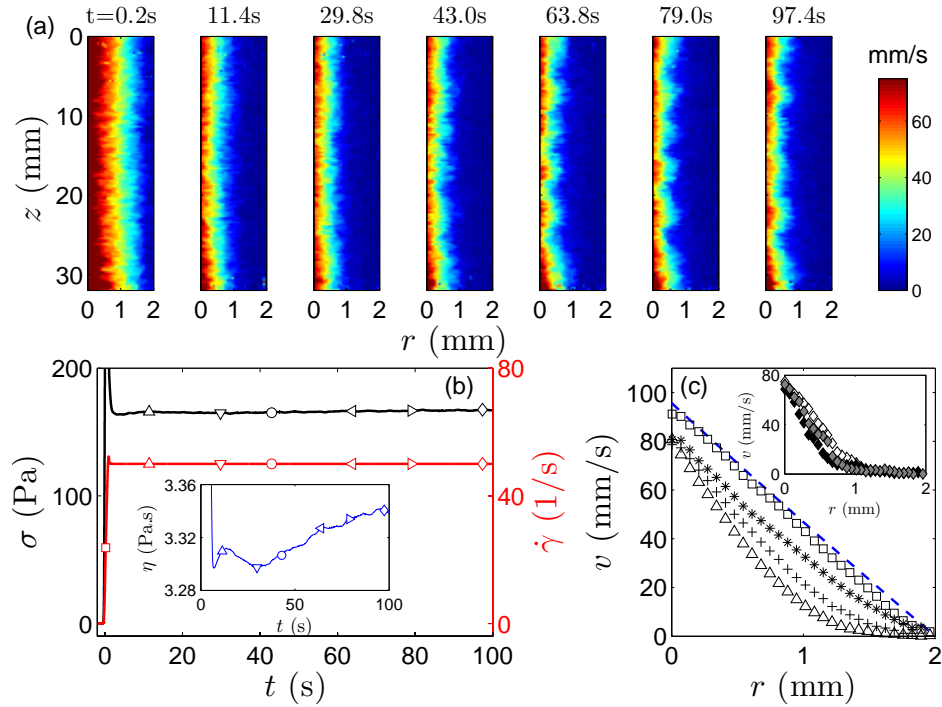


FIGURE 5.9 – Établissement des bandes de cisaillement et de l’instabilité élastique après l’application d’un saut en taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 0$  à  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ . (a) Cartes du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués en haut de chaque image. Chaque image correspond à une moyenne sur 50 tirs envoyés toutes les 0,4 ms (voir la vidéo supplémentaire 9). (b) Superposition de la réponse en contrainte  $\sigma(t)$  enregistrée simultanément et synchronisée en temps avec les images de vitesse avec le signal instantané du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre. Les symboles indiquent les temps correspondant aux images de vitesse montrées en (a). L’insert montre l’augmentation de la viscosité apparente  $\eta(t) = \sigma(t)/\dot{\gamma}(t)$  au cours de la mise en place de l’instabilité. (c) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur de la sonde et tracés pour  $t = 0,17$  ( $\square$ ),  $3,0$  ( $*$ ),  $5,0$  ( $+$ ), et  $9,0$  s ( $\triangle$ ). La ligne en pointillés bleus montre le profil de vitesse théorique attendu pour un fluide newtonien dans le régime laminaire au taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ . En insert, les profils de vitesse  $v(r, z, t)$  à l’instant  $t = 95,0$  s sont tracés pour trois hauteurs  $z = 22,4$  mm (symboles blancs, position d’un écoulement centrifuge),  $z = 20,6$  mm (symboles gris, position entre un écoulement centrifuge et centripète) et  $z = 18,9$  mm (symboles noirs, position d’un écoulement centripète). ([CTAB]=0,3 M, [NaNO<sub>3</sub>]=0,4 M, 1% de billes de verre,  $T = 28^\circ\text{C}$ ).

ou des diwhirls dans les solutions de polymères [Larson et al., 1990], l’apparition des rouleaux élastiques dans le cas des micelles géantes induit une dissipation additionnelle ce qui se traduit par une augmentation de la viscosité comme l’illustre l’insert de la figure 5.9(b) [Fardin et Lerouge, 2012; Fardin et al., 2008].

### Dynamiques complexes des écoulements stationnaires à plus haut taux de cisaillement

Depuis environ une dizaine d’années, les systèmes micellaires semi-dilués sont connus pour présenter des fluctuations temporelles complexes le long du plateau de contrainte

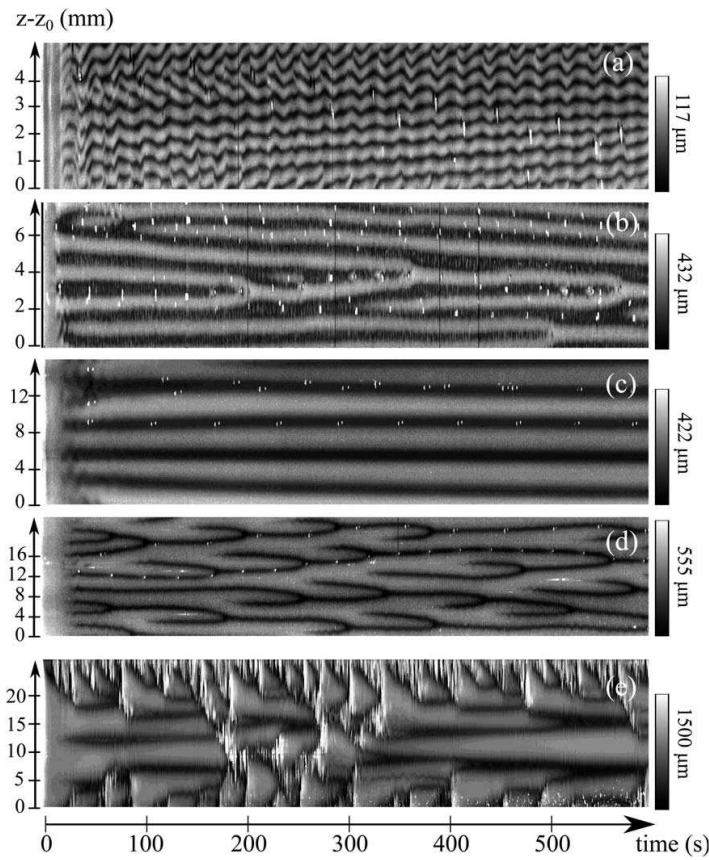


FIGURE 5.10 – **Dynamiques spatio-temporelle d'écoulements secondaires obtenus à partir de la position de l'interface entre les deux bandes de cisaillement après l'application de saut en taux de cisaillement.** (a) Motif de « zig-zag » obtenu pour une solution  $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ , à  $T = 28^\circ\text{C}$ ,  $\Lambda = 0,04$  et  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ . (b) Motif d'« anti-flamme » obtenu pour une solution  $[\text{CTAB}] = 0,4 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,3 \text{ M}$ , à  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\Lambda = 0,08$  et  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$ . (c) Écoulement de rouleaux de Taylor élastiques quasi-stationnaire obtenu pour une solution  $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,5 \text{ M}$ , à  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\Lambda = 0,08$  et  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ . (d) Motif de « flamme » obtenu pour une solution  $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,3 \text{ M}$ , à  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\Lambda = 0,08$  et  $\dot{\gamma} = 250 \text{ s}^{-1}$ . (e) Motif de « bouffées turbulentes » obtenu pour une solution  $[\text{CTAB}] = 0,3 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4 \text{ M}$ , à  $T = 28^\circ\text{C}$ ,  $\Lambda = 0,2$  et  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ . L'amplitude des oscillations de l'interface est donnée en échelle de gris. L'axe vertical représente la coordonnée spatiale le long de l'axe du cylindre avec une origine prise au milieu de la cellule de Taylor-Couette.

et au-delà [Bécu et al., 2004, 2007; López-González et al., 2004]. Grâce à des mesures rhéo-optiques, ces fluctuations ont été attribuées à des instabilités secondaires qui se développent à partir de la première instabilité élastique [Fardin et al., 2009; Fardin et Lerouge, 2012]. Quand on augmente le taux de cisaillement, les rouleaux initialement stables dans la bande fortement cisailée deviennent instables et conduisent à des régimes dynamiques complexes [Lerouge et al., 2006b; Fardin et al., 2008]. Finalement, ces rouleaux laissent la place à une turbulence élastique entièrement développée [Fardin et al., 2010]. Les motifs d'écoulement observés dépendent à la fois du système étudié, du taux de cisaillement appliqué mais aussi de la géométrie de cisaillement utilisée. La

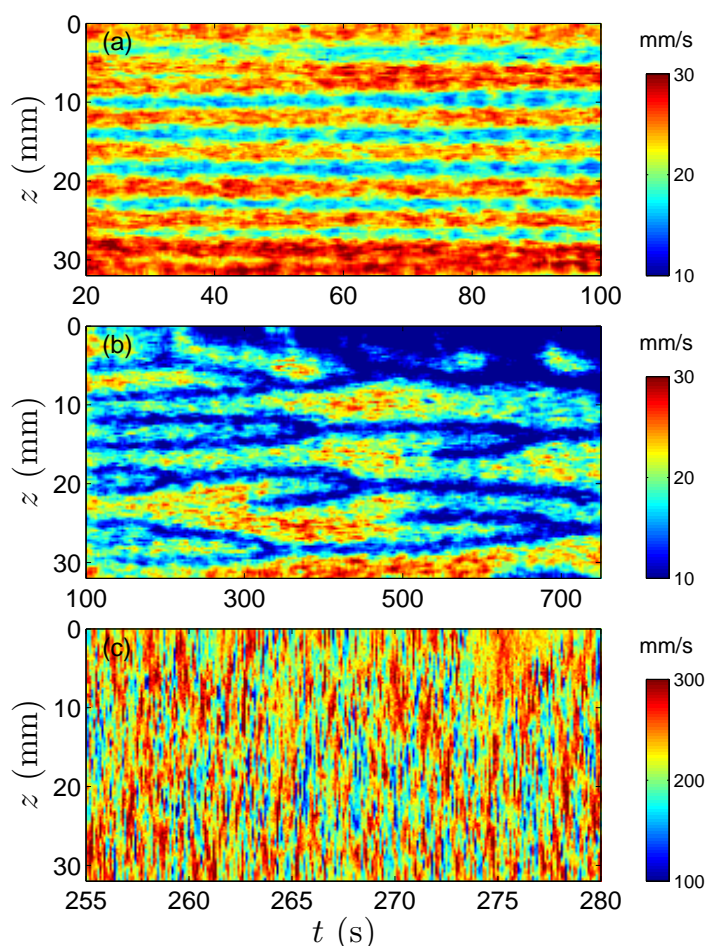


FIGURE 5.11 – Diagramme spatio-temporel de la vitesse  $v(r_0, z, t)$  à différents taux de cisaillement. (a) Écoulement de rouleaux de Taylor élastiques quasi-stationnaires à  $\dot{\gamma} = 30 \text{ s}^{-1}$  pour  $r_0 = 0,14 \text{ mm}$ . (b) Motif de « flamme » à  $\dot{\gamma} = 75 \text{ s}^{-1}$  pour  $r_0 = 1,15 \text{ mm}$ . (c) État totalement turbulent à  $\dot{\gamma} = 140 \text{ s}^{-1}$  pour  $r_0 = 0,14 \text{ mm}$ . L’instant  $t = 0$  correspond à la mise en écoulement. Chaque jeu de données a été enregistré une fois le régime stationnaire établi ([CTAB]=0,3 M, [NaNO<sub>3</sub>]=0,4 M, 1% de billes de verre,  $T = 28^\circ\text{C}$ ).

figure 5.10 montre, dans le régime de bandes de cisaillement, différentes dynamiques spatio-temporelles. Ainsi des motifs de « zig-zag », de « flamme », d’« anti-flamme » et de « bouffées turbulentes » ont été rapportés [Fardin et al., 2012b,a].

Alors que ces travaux précédents étaient basés sur des visualisations optiques, notre technique d’imagerie ultrasonore nous permet de quantifier les fluctuations du champ de vitesse. Dans la figure 5.11(a), nous commençons par vérifier que les rouleaux restent stables pour des faibles taux de cisaillement situés sur le plateau de contrainte par exemple  $\dot{\gamma} = 30 \text{ s}^{-1}$ . À l’exception de la fusion de deux rouleaux localisés à  $z \simeq 5\text{--}10 \text{ mm}$  à  $t \simeq 60 \text{ s}$ , le diagramme spatio-temporel du profil de vitesse  $v(r_0, z, t)$  situé à  $r_0 = 0,14 \text{ mm}$  du rotor (ou quelque soit la position dans l’entrefer) reste stable au cours du temps une fois que les rouleaux se sont mis en place comme nous l’avons décrit sur la figure 5.9(a). À plus haut taux de cisaillement, par exemple à  $\dot{\gamma} = 75 \text{ s}^{-1}$ , [voir la figure 5.11(b)], des annihilations et des créations de rouleaux sont observés ce

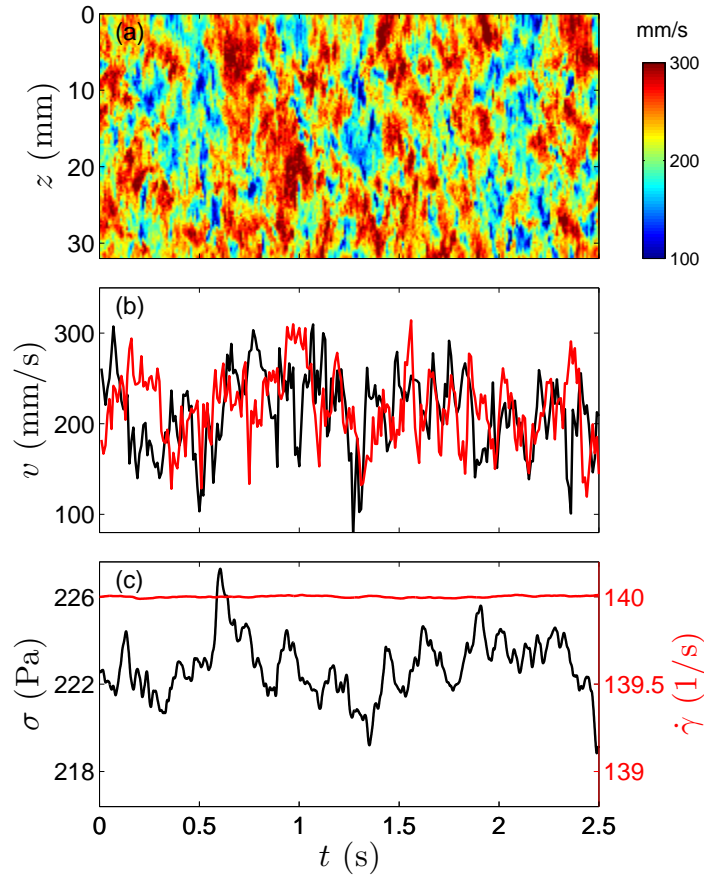


FIGURE 5.12 – **Turbulence élastique à  $\dot{\gamma} = 140 \text{ s}^{-1}$  visualisée sur une courte durée de 2,5 s enregistrée 63 s après la mise en écoulement.** (a) Diagramme spatio-temporel de la vitesse  $v(r_0, z, t)$  pour  $r_0 = 0,14 \text{ mm}$ . (b) Évolution temporelle de la vitesse  $v(r_0, z_0, t)$  pour  $r_0 = 0,14 \text{ mm}$  et  $z_0 = 9,9 \text{ mm}$  (ligne noire) et  $z_0 = 19,9 \text{ mm}$  (ligne rouge). (c) Données rhéologiques, taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  (en rouge) et contrainte  $\sigma(t)$  (en noir) enregistrées simultanément avec la vitesse. Les mesures de vitesse correspondent ici à des moyennes sur 7 ms de 50 tirs séparés de  $140 \mu\text{s}$ . ([CTAB]=0,3 M, [NaNO<sub>3</sub>]=0,4 M, 1% de billes de verre,  $T = 28^\circ\text{C}$ ).

qui mène à un motif de « flamme » (« flame pattern ») déjà observé par Fardin et al. [2012b] [voir aussi la figure 5.10(d)]. Enfin pour  $\dot{\gamma} = 140 \text{ s}^{-1}$  la turbulence élastique est entièrement développée et le diagramme spatio-temporel de la figure 5.11(c) montre des fluctuations rapides et très hétérogènes<sup>1</sup>.

La figure 5.12 nous donne une meilleure vision de la turbulence élastique pour  $\dot{\gamma} = 140 \text{ s}^{-1}$  grâce à des mesures de vitesse avec une grande résolution temporelle sur 2,5 s (voir aussi la vidéo supplémentaire 10). Le diagramme spatio-temporel de la figure 5.12(a) tracé pour une position radiale  $r_0$  donnée proche du rotor, révèle la cohérence spatiale du champ d'écoulement sous la forme de « bouffées turbulentes » qui se propagent généralement vers le bas dans la cellule de Taylor-Couette. Cela montre

1. Notons ici que les échelles de temps sur lesquelles les expériences ont été réalisées ne sont pas les mêmes. En effet les motifs de « flamme » à  $\dot{\gamma} = 75 \text{ s}^{-1}$  apparaissent sur des temps beaucoup plus long que la visualisation de la turbulence à  $\dot{\gamma} = 140 \text{ s}^{-1}$ .

une corrélation notable entre les deux signaux  $v(r_0, z_0, t)$  montrés sur la figure 5.12(b) pour deux positions verticales séparées de 10 mm. Le fait que ces séries chronologiques semblent décorrélées sur certains intervalles de temps (par exemple  $t \simeq 0,2$  ou 1 s) suggère que ces bouffées turbulentes se déplacent également dans la direction radiale. Finalement, la figure 5.12(c) montre que le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est bien fixé à une précision meilleure que 0,05% en dépit des fluctuations de la contrainte qui sont de l'ordre de 2%. Ces fluctuations de contraintes ne sont donc pas dues à une mauvaise application du taux de cisaillement du rhéomètre. Comme attendu pour des mesures globales, la plupart des fluctuations sont lissées dans le signal de contrainte. Cependant on peut noter qu'un minimum au niveau de la contrainte (par exemple à  $t \simeq 0,4$  s ou 1,4 s) correspond aux plus faibles vitesses alors qu'un paquet turbulent intense semble être relié à des excursions intenses de la contrainte dans des grandes valeurs (par exemple  $t \simeq 0,6$  ou 0,9 s). L'analyse plus détaillée des variations spatio-temporelles du champ de vitesse dans le régime turbulent sera menée prochainement.

## Bilan

Dans ce paragraphe, nous nous sommes intéressés à l'étude d'une solution semi-diluée de micelles géantes bien connue constituée de bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB) de concentration 0,3 M et de nitrate de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ) de concentration 0,4 M dissout dans de l'eau distillée. L'imagerie ultrasonore bidimensionnelle nous a permis de retrouver les résultats sur les bandes de cisaillement et de visualiser l'instabilité élastique qui se développe dans la bande fluide. Cependant, alors que pour l'eau nous avons réussi à retrouver le caractère supercritique de l'instabilité inertielle TVF, la faible résolution radiale dans la bande fluide ne nous permet pas ici de calculer le paramètre d'ordre  $\delta v$  proprement et de construire un diagramme de bifurcation. Une question reste alors ouverte sur le caractère de l'instabilité élastique qui se forme dans la bande induite par le cisaillement. De plus, une forte asymétrie dans la carte du champ de vitesse radiale a été mise en évidence pour ces rouleaux de Taylor élastique. Enfin, les dynamiques complexes de l'écoulement, motif de flamme, bouffées turbulente, ont été imagées à plus haut taux de cisaillement et une analyse plus détaillée des corrélations entre les fluctuations de contrainte et les fluctuations du champ de vitesse sera proposée dans des prochains travaux. Notons que l'ensemble de ces résultats a fait l'objet d'une publication dans le journal *European Physical Journal E* (EPJE) [Perge et al., 2014b]. Penchons-nous à présent, vers l'étude de la solution micellaire toujours constituée de CTAB et de  $\text{NaNO}_3$  mais en plus faibles concentrations :  $[\text{CTAB}] = 0,1$  M,  $[\text{NaNO}_3] = 0,3$  M qui correspond à un régime de concentration intermédiaire entre le régime semi-dilué et dilué.

## 5.3 Régime de concentration intermédiaire

Alors que la solution semi-diluée de micelles géantes ( $[\text{CTAB}] = 0,3$  M,  $[\text{NaNO}_3] = 0,4$  M) bien connue présente un plateau en contrainte et un phénomène de bandes de cisaillement avec des écoulements purement élastique, la solution micellaire ( $[\text{CTAB}] = 0,1$  M,  $[\text{NaNO}_3] = 0,3$  M) que nous allons étudier à présent est la première d'une famille de solution ( $[\text{CTAB}] = 0,2; 0,3; 0,4; 0,5; 0,6$  M et  $[\text{NaNO}_3] = 0,3$  M à  $T = 30^\circ\text{C}$ ) à ne pas

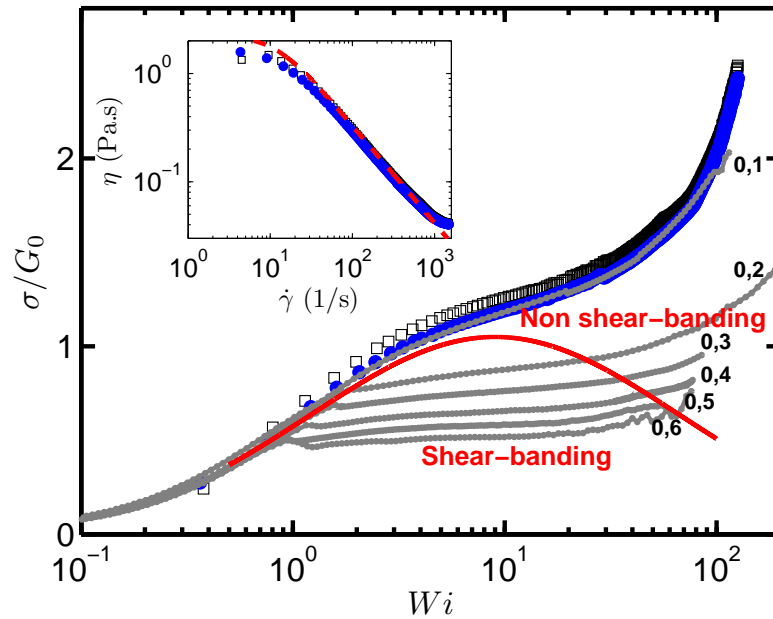


FIGURE 5.13 – **Courbes d’écoulement adimensionnées du système micellaire CTAB-NaNO<sub>3</sub>.** Les courbes de symboles (●) [respectivement (□)] effectuées avec une solution ([CTAB]=0,1 M et [NaNO<sub>3</sub>]=0,3 M) avec des billes de verre creuses [respectivement du Kalliroscope] ont été comparées avec les courbes d’écoulement de solutions micellaires présentant des bandes de cisaillement (lignes grises de haut en bas [CTAB]=0,2 ; 0,3 ; 0,4 ; 0,5 ; 0,6 M pour [NaNO<sub>3</sub>]=0,3 M à  $T = 30^\circ\text{C}$ ). La ligne rouge donne la frontière approximative entre les écoulements avec bandes de cisaillement (en dessous de la ligne) et sans bande de cisaillement (au dessus de la ligne). Les données des courbes en gris sont issues de Fardin et al. [2012b]. En insert : Courbe d’écoulement représentant la viscosité  $\eta$  en fonction de  $\dot{\gamma}$ . La ligne rouge représente le modèle de Carreau discutée dans le texte. ( $T = 30^\circ\text{C}$ )

présenter de bandes de cisaillement (voir la figure 5.13). À ces concentrations, l’inertie n’est plus négligeable ( $\mathcal{E} \sim 1$ ) et on observe des motifs d’écoulement qui ressemblent fortement au régime inertio-élastique des solutions de polymères diluée [Dutcher et Muller, 2013]. Nous montrerons ainsi que l’instabilité inertio-élastique qui se développe suit une bifurcation supercritique et nous étudierons la structure des rouleaux qui apparaissent au dessus du seuil.

### 5.3.1 Une solution micellaire sans bande de cisaillement

Ce système a été choisi spécifiquement car comme le montre la figure 5.13, c’est la première d’une famille de solution à ne pas présenter de bandes de cisaillement (à concentration en sel et température fixés : [CTAB]=0,1 M et  $T = 30^\circ\text{C}$ ). Les solutions pour lesquelles [CTAB]=0.2–0.7 M sont connues pour présenter des bandes de cisaillement et pour développer une instabilité purement élastique dans la bande de haut taux de cisaillement [Fardin et al., 2012b] et 5.2. Au contraire dans cette solution où [CTAB]=0.1 M, le comportement est uniquement rhéo-fluidifiant. En effet, l’insert

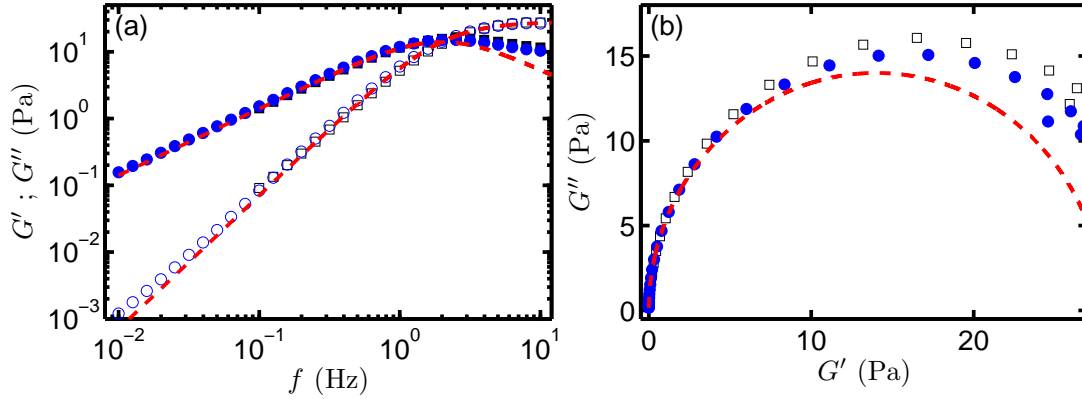


FIGURE 5.14 – Rhéologie linéaire de la solution micellaire ( $[\text{CTAB}] = 0,1$  M et  $[\text{NaNO}_3] = 0,3$  M) à  $T = 30^\circ\text{C}$ . (a) Evolution du module élastique  $G'$  [( $\circ$ ) : avec Kaliroscope ; ( $\square$ ) : avec billes de verre creuses] et du module visqueux  $G''$  [( $\bullet$ ) : avec Kaliroscope ; ( $\blacksquare$ ) : avec billes de verre creuses] avec la fréquence  $f$ . (b) Diagramme Cole-Cole représentant  $G''$  en fonction de  $G'$  [( $\square$ ) : avec billes de verre creuses et ( $\bullet$ ) : avec Kaliroscope]. Les lignes en pointillés gris représentent l'interpolation du modèle de Maxwell avec des coefficients  $G_0 = 28$  Pa et  $\tau_s = 0,08$  s.

de la figure 5.13 montre que la viscosité suit bien le modèle de Carreau :

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_0(1 + (\tau_s \dot{\gamma})^2)^{-n} \quad (5.4)$$

où  $\tau_s = 0,08$  s et  $G_0 = 28$  Pa ont été déterminés à partir des expériences d'oscillation de faibles amplitudes (voir la figure 5.14) ce qui conduit à  $\eta_0 = G_0 \tau_s = 2,2$  Pa.s, et avec un exposant de rhéo-fluidification  $n = 0,45$ . On peut ainsi calculer le nombre de Reynolds  $Re = \rho d^2 \dot{\gamma} / \eta(\dot{\gamma})$  en prenant  $\rho = 10^3$  kg.m $^{-3}$ , ainsi que le nombre de Weissenberg  $Wi = \tau_s \dot{\gamma}$ . Comme il est fait de manière courante dans les solutions de polymères rhéo-fluidifiantes [Dutcher et Muller, 2013], on suppose que  $\tau_s$  est indépendant de  $\dot{\gamma}$ . De plus nous avons également vérifié sur la figure 5.15 qu'on pouvait estimer le nombre de Weissenberg  $Wi = \tau_s \dot{\gamma}$  comme étant le rapport  $N_1 / \sigma$  de la première différence de contrainte normale sur la contrainte de cisaillement [voir le paragraphe 5.2.3].

Dans toutes les expériences de cette partie, le fluide est cisailé dans une cellule de Taylor-Couette où seul le cylindre intérieur est en rotation et muni d'un bouchon pour prévenir de l'évaporation mais aussi des possibles éjections aux hauts taux de cisaillement. La hauteur de la cellule est  $H = 60$  mm et la taille de l'entrefer est  $d = 2$  mm, tandis que le rayon du cylindre intérieur est  $R_i = 23$  mm ce qui permet de se placer dans l'approximation des petits entrefers ( $\Lambda \simeq 0.087 \ll 1$ ).

### 5.3.2 Route vers la turbulence inertio-élastique

La figure 5.16 montre les motifs d'écoulement observés par imagerie ultrasonore [Fig.5.16(a)] et par visualisation directe [Fig.5.16(b)] lorsqu'on augmente puis qu'on diminue le taux de cisaillement selon une rampe lente (voir aussi la vidéo supplémentaire 11). Pour ces deux expériences indépendantes, on n'observe pas de forte hystérésis. L'écoulement passe d'un écoulement de Couette purement azimuthal pour des taux de

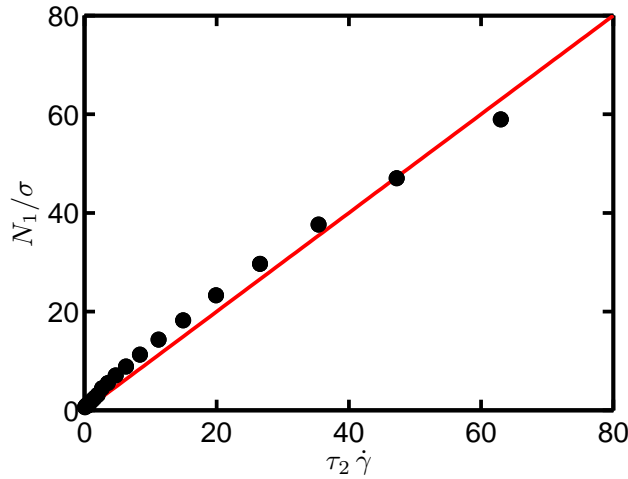


FIGURE 5.15 – **Nombre de Weissenberg.** Nombre de Weissenberg déterminé comme le rapport de la première différence de contrainte normale  $N_1$  et de la contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du produit  $\tau_2 \dot{\gamma}$  pour notre solution micellaire  $[\text{CTAB}] = 0,1 \text{ M}$  et  $[\text{NaNO}_3] = 0,3 \text{ M}$  comportant des billes de verre creuses (1% en masse). La ligne rouge correspond à  $N_1/\sigma = \tau_2 \dot{\gamma}$ . Expérience réalisée dans une géométrie cône-plan de diamètre 40 mm et d'angle  $2^\circ$ .

cisaillement en-deçà de  $\dot{\gamma} \simeq 950 \text{ s}^{-1}$ , à un écoulement en rouleaux dans un premier temps stationnaire, puis instationnaire, et finalement un écoulement turbulent à haut taux de cisaillement. Il repasse ensuite par les mêmes états lorsqu'on diminue  $\dot{\gamma}$ . La première transition n'est pas réellement visible sur la figure 5.16 mais elle est étudiée en détail sur la figure 5.17. Cette séquence d'instabilités est très similaire à celle observée dans les solutions de polymères diluées à élasticité modérée étudiées par Dutcher et Muller [2013] (PEO dans un mélange glycérol-eau d'élasticité  $\mathcal{E} \sim 0,1 - 0,2$ ). Par conséquent si l'on utilise la nomenclature récente, nous pouvons appeler l'écoulement en rouleaux stationnaire « standing vortices » (SV), qui correspondent à un « Taylor Vortex Flow » (TVF) [Andereck et al., 1986] modifié par l'élasticité. Le cas des rouleaux instationnaires observé pour des taux de cisaillement de l'ordre de  $\dot{\gamma} \simeq 1200 \text{ to } 1300 \text{ s}^{-1}$  est similaire aux motifs de « disordered rotating standing waves » (DRSW), l'équivalent des « Wavy Vortex Flow » (WVF) pour une élasticité modérée [Andereck et al., 1986]. Et finalement, le dernier état atteint pour  $\dot{\gamma} \gtrsim 1300 \text{ s}^{-1}$  peut être appelé « Elastically Dominated Turbulence » (EDT) similaire aux « disordered oscillations » (DO) observées par Groisman et Steinberg [1997] et à la « turbulence élastique » de Muller [2008].

Appeler cet état « Inertio-Elastic Turbulence » (IET) ou « Elasto-Inertial Turbulence » (EIT) [Samanta et al., 2013] serait plus approprié puisque  $\mathcal{E} \sim 1$  comme on peut le voir sur la figure 5.17. Une analyse statistique plus approfondie de cet état de turbulence inertio-élastique est en cours mais les résultats sont pour l'instant trop prématurés pour être présentés ici. Cependant un aperçu du caractère turbulent à  $\dot{\gamma} = 1500 \text{ s}^{-1}$  sera donné au paragraphe 5.3.5.



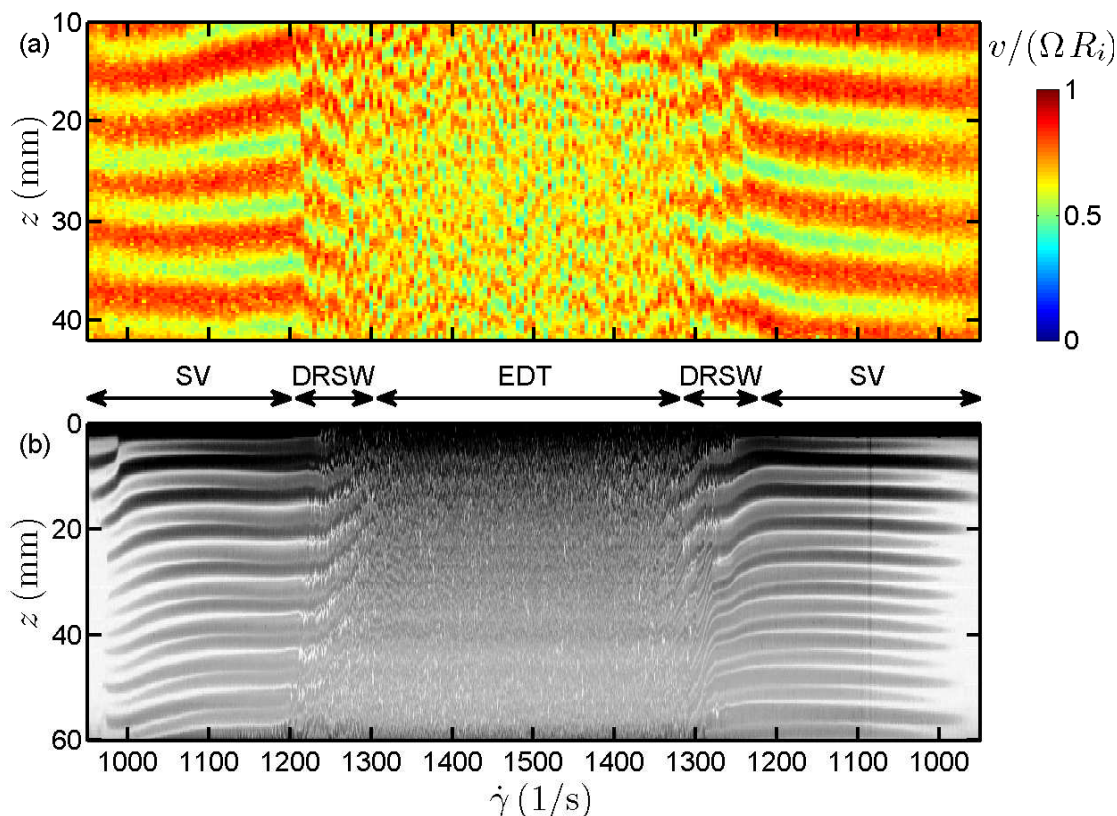


FIGURE 5.16 – Diagrammes spatio-temporels montrant le passage par différents états d’une solution de CTAB- $\text{NaNO}_3$  en appliquant une rampe linéaire montante puis descendante en taux de cisaillement entre  $\dot{\gamma}=950$  et  $1500$   $\text{s}^{-1}$ . (a) Mesures ultrasonores de la vitesse adimensionnée  $v(r_0, z, t)/(\dot{\gamma}d)$  à une position  $r_0 \simeq R_i + d/4$  du rotor en utilisant un échantillon ensemencé par des billes de verre. La vitesse de la rampe est de  $2,5$   $\text{s}^{-1}/\text{s}$ . (b) Visualisation des motifs d’écoulement en utilisant un échantillon avec du Kalliroscope. La vitesse de la rampe est de  $1,7$   $\text{s}^{-1}/\text{s}$ . L’échelle de gris représente l’intensité lumineuse réfléchiée et collectée par une webcam standard. Les deux techniques de visualisation suggèrent que le chemin vers la turbulence que le fluide emprunte est le suivant :  $\text{CF} \rightarrow \text{SV} \rightarrow \text{DRSW} \rightarrow \text{EDT}$  et que ce chemin est réversible. Une estimation quantitative du seuil entre CF et SV sera donnée sur la figure 5.17 mais on peut déjà estimer les seuils des différentes transitions à  $950$   $\text{s}^{-1}$  pour  $\text{CF} \rightarrow \text{SV}$ ,  $1200$   $\text{s}^{-1}$  pour  $\text{SV} \rightarrow \text{DRSW}$  et  $1300$   $\text{s}^{-1}$  pour  $\text{DRSW} \rightarrow \text{EDT}$ . ( $[\text{CTAB}] = 0,1$  M et  $[\text{NaNO}_3] = 0,3$  M à  $T = 30^\circ\text{C}$ )

### 5.3.3 Étude de la bifurcation supercritique $\text{CF} \rightarrow \text{SV}$

La carte du champ de vitesse nous permet de déterminer précisément le seuil de la première instabilité et la bifurcation conduisant de l’écoulement de Couette (CF) aux « standing vortices » (SV). La figure 5.17 montre que cette première instabilité inertio-élastique est une instabilité linéaire (ce qui explique l’absence d’hystérésis) caractérisée par une bifurcation fourche supercritique (symboles pleins) comme pour l’instabilité inertielle entre l’écoulement de Couette et l’écoulement en rouleaux de Taylor (symboles vides). Ce diagramme d’instabilité a été calculé de la même manière que pour la figure 3.9 en prenant le paramètre d’ordre comme la différence de vitesse entre le

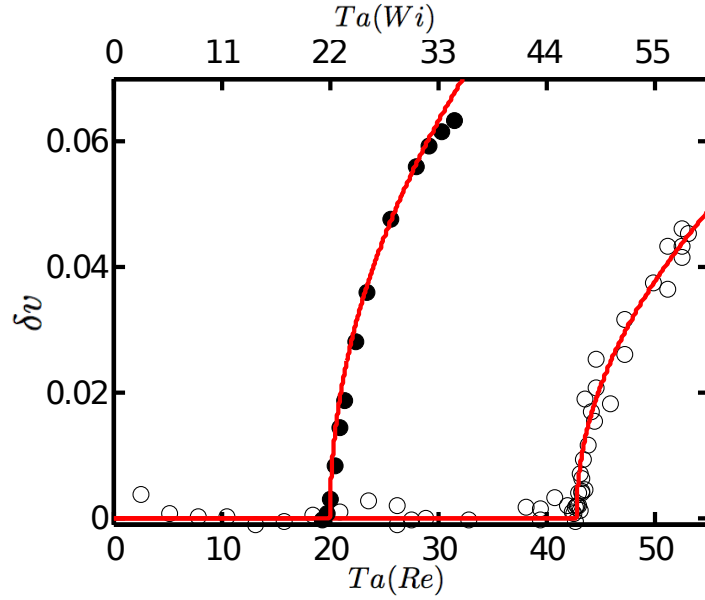


FIGURE 5.17 – Comparaison des bifurcations CF→TVF dans de l’eau (○) et CF→SV dans la solution micellaire : [CTAB]=0,1 M et [NaNO<sub>3</sub>]=0,3 M (●). Le paramètre d’ordre est la déviation adimensionnée à partir de l’écoulement de base  $\delta v/v_i = \langle \frac{|v-v_{lam}|}{R_i \Omega_i} \rangle$  où  $v_{lam}$  l’écoulement de Couette purement azimutal, et la moyenne est prise sur tout l’espace ( $r$  et  $z$ ). L’axe du nombre de Taylor purement inertiel (en bas)  $Ta(Re) = \Lambda^{1/2} Re$  est valable pour tous les points alors que l’axe du nombre de Taylor purement élastique (en haut)  $Ta(Wi) = \Lambda^{1/2} Wi$  n’est valable que pour les points des données inertio-élastiques (●). Les lois  $\delta v \sim (Ta - Ta_c)^{1/2}$  caractéristiques d’une bifurcation supercritique sont représentées par les lignes rouges.

champ de vitesse de l’écoulement mesurée  $v$  et le champ de vitesse de l’écoulement de base azimutal  $v_{lam} \simeq \Omega R_i - \dot{\gamma} r$ , normalisé par la vitesse au rotor  $\Omega R_i$ . Dans le cas purement inertiel, le paramètre de contrôle est  $Ta = \Lambda^{1/2} Re$  et on retrouve le résultat classique :  $Ta_c \simeq 41$  [Taylor, 1923b; Donnelly et Fultz, 1960]. Tandis que dans notre système micellaire, les seuils obtenus en utilisant d’une part le nombre de Reynolds dans la définition du nombre de Taylor et d’autre par le nombre de Weissenberg sont respectivement  $Ta_c(Re) \simeq 20$  et  $Ta_c(Wi) \simeq 22$  donc  $\mathcal{E} = Ta_c(Wi)/Ta_c(Re) \simeq 1,1$  au seuil de l’instabilité. Cette valeur du nombre d’élasticité montre clairement la nature inertio-élastique de l’instabilité. Bien sûr, on s’attend à ce que ce seuil inertio-élastique dépende en fait à la fois de  $Re$  et de  $Wi$  à travers la fonction  $f$  définie précédemment au paragraphe 4.1. L’écoulement serait alors instable si  $Ta = \Lambda^{1/2} f(Re, Wi) > Ta_c$ . Des études théoriques futures sur la forme analytique de  $f$  dans le but de reproduire nos résultats sont en cours.

### 5.3.4 Étude de la forme des « Standing Vortices »

Contrairement aux études basées seulement sur des visualisations d’écoulement, notre technique d’imagerie ultrasonore nous permet aussi de comparer quantitativement l’état de « Standing Vortices » de notre système micellaire pour lequel  $\mathcal{E} \sim 1$  avec l’état de « Taylor Vortex Flow » de l’eau pour lequel  $\mathcal{E} = 0$ . En effet, nous l’avons décrit au

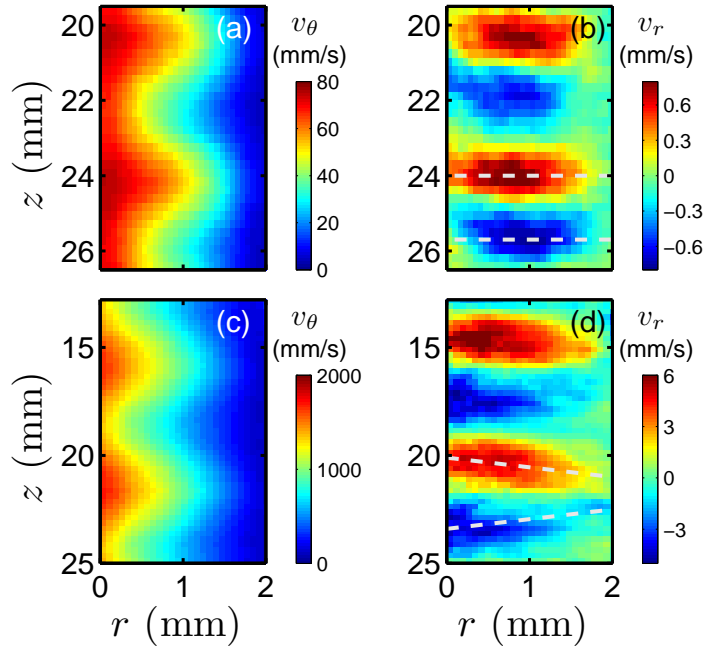


FIGURE 5.18 – Comparaison de la forme des rouleaux dans de l’eau et dans la solution micellaire :  $[\text{CTAB}] = 0,1 \text{ M}$  et  $[\text{NaNO}_3] = 0,3 \text{ M}$  à  $T = 30^\circ\text{C}$ . (a,c) Cartographies du champs des vitesses azimutale  $\langle v_\theta(r, z, t) \rangle_t$  et (b,d) radiale  $\langle v_r(r, z, t) \rangle_t$  dans de l’eau à  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$  (a et b) et dans la solution micellaire à  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$  moyennées sur 1000 et 8000 tirs consécutifs.  $v_\theta$  et  $v_r$  ont été obtenues à partir de deux expériences indépendantes où le cylindre intérieur tournait dans deux sens opposés nous donnant les mesures de vitesses  $v_+$  et  $v_-$ . On trouve alors  $v_\theta = (v_+ - v_-)/2$  et  $v_r = (v_+ + v_-)/2$ .

paragraphe 3.2.2, on peut retrouver les deux composantes horizontales de l’écoulement  $v_\theta$  et  $v_r$  en combinant les vitesses  $v_+$  and  $v_-$  de deux mesures ultrasonores au même taux de cisaillement mais à des sens de rotation opposés  $+\dot{\gamma}$  and  $-\dot{\gamma}$  et en utilisant  $v_\theta = (v_+ - v_-)/2$  and  $v_r = \tan \phi (v_+ + v_-)/2$ . Les figures 5.18(a) et (c) comparent la carte du champ de vitesse azimutal pour de l’eau à  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$  (dans l’état TVF) et pour notre solution micellaire à  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$  (dans l’état SV). Dans les deux cas, des oscillations verticales sont observées. Ces ondulations sont la signature de rouleaux contra-rotatifs. Dans les régions où l’écoulement radial est centripète, on observe des déplacements lents du fluide vers l’intérieur et dans les régions où l’écoulement radial est centrifuge, on observe des déplacements rapides vers l’extérieur. Cependant l’état TVF inertiel et l’état SV inertio-élastique ont des longueurs d’onde assez différentes,  $\lambda/d \simeq 2$  et  $3$  respectivement<sup>2</sup>. On remarque également que les lignes d’iso-vitesse sont plus compressées dans le cas inertio-élastique. Les figures 5.18(b) et (d) montrent la carte du champ de vitesse radiale confirmant ainsi que pour chaque longueur d’onde dans les ondulations de la vitesse azimutale, il y a une paire de rouleaux contra-rotatifs. À l’inverse du cas purement inertiel, les paires de rouleaux dans le cas inertio-élastique sont asymétriques avec des régions où l’écoulement est centripète ( $v_r < 0$  en bleu) qui

2. Noter les échelles verticales différentes sur les figures 5.18(a) et (b) et sur les figures 5.18 (c) et (d).

pointent vers le bas et des régions où l'écoulement est centrifuge ( $v_r > 0$  en rouge) qui pointent vers le haut [voir les lignes en pointillés blancs de la figure 5.18(d)]. Cette asymétrie est certes moins marquée que pour la solution micellaire CTAB- $\text{NaNO}_3$  du régime semi-dilué mais elle est bien présente et laisse suggérer que son importance augmente avec le nombre d'élasticité. Enfin, au lieu de bien correspondre aux positions des maxima et des minima des oscillations de  $v_\theta$  (comme pour l'état TVF où  $\mathcal{E} = 0$ ), les régions d'écoulement centrifuge et centripète sont décalées de  $\lambda/2$  dans le cas de l'état SV par rapport au cas inertiel.

L'asymétrie de ces rouleaux inertio-élastiques nous rappelle celle observée dans le paragraphe précédent pour les rouleaux de Taylor élastique. Cependant, cette asymétrie semble être moins marquée lorsqu'on diminue l'élasticité. Une étude plus approfondie sur l'intensité de l'asymétrie en fonction du nombre d'élasticité serait alors intéressante.

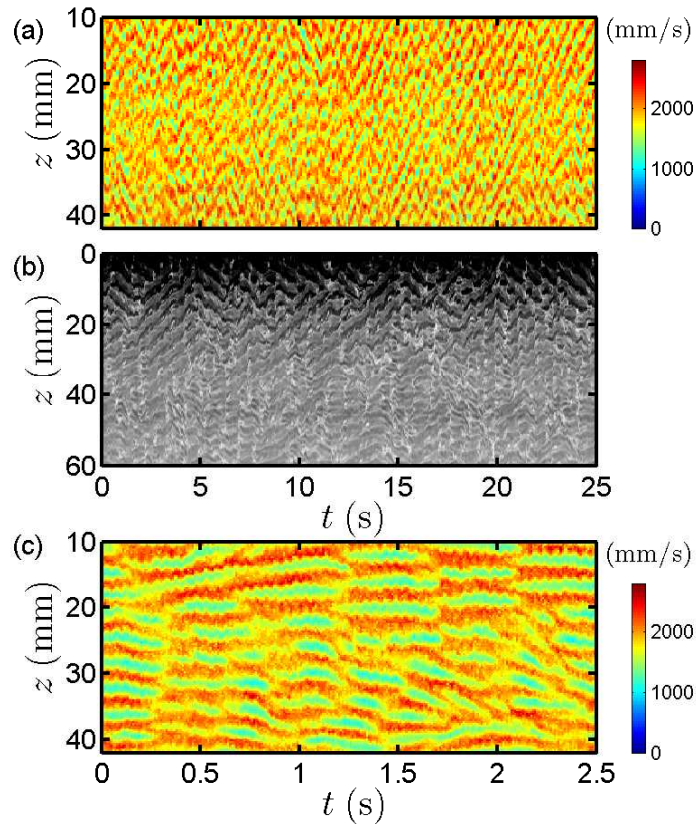


FIGURE 5.19 – Diagrammes spatio-temporel de l'écoulement soumis à un taux de cisaillement constant  $\dot{\gamma} = 1500 \text{ s}^{-1}$  pour le système micellaire étudié :  $[\text{CTAB}] = 0,1 \text{ M}$  et  $[\text{NaNO}_3] = 0,3 \text{ M}$  à  $T = 30^\circ\text{C}$ . (a,c) Vitesse  $v(r_0, z)$  codée en niveau de couleur linéaire et mesurée à partir de la technique d'imagerie ultrasonore pour une distance  $r_0 = d/4$  du rotor. (b) Visualisation directe, à l'aide d'une webcam standard, de l'échantillon dans lequel du Kalliroscope a été rajouté.

### 5.3.5 Vers une étude statistique de la turbulence inertio-élastique

Pour conclure, nous avons mis en évidence ici qu'un système micellaire ne présentant pas de bandes de cisaillement est sujet à des instabilités inertio-élastiques comme Dutcher et Muller [2013] l'ont vu dans des solutions de polymères. Cette instabilité apparaît comme étant supercritique et les rouleaux qui en découlent ont une structure asymétrique. Cette asymétrie, non observée dans le cas des rouleaux de Taylor inertiel, semble être caractéristique des rouleaux élastiques. L'étude de la deuxième transition et de la turbulence inertio-élastique fera l'objet de travaux ultérieurs. Cependant, la figure 5.19 donne un aperçu du motif observé lorsqu'on soumet l'échantillon à un taux de cisaillement constant  $\dot{\gamma} = 1500 \text{ s}^{-1}$ . À ce taux de cisaillement, l'état de turbulence élastique (EDT) est atteint comme on a pu le voir dans le diagramme spatio-temporel de la figure 5.16. Cependant, les motifs observés sur la figure 5.19(c) résolue temporellement sur une durée d'expérience de 2,5 s semblent indiquer que cette turbulence est certes chaotique dans le temps mais reste spatialement cohérente. En effet, la structure de rouleaux n'est pas détruite. Les rouleaux semblent persister spatialement mais sont instables temporellement et s'annihilent et se créent en permanence. Notons que l'ensemble des travaux présentés dans ce paragraphe a fait l'objet d'une publication dans le journal *Soft Matter* [Perge et al., 2014a].

Après nous être intéressés au régime semi-dilué des solutions de micelles géantes où la structure des micelles ressemble à de longs cylindres enchevêtrés qu'on nomme « wormlike micelles », puis à un régime de concentration intermédiaire entre le régime semi-dilué et le régime dilué, nous allons maintenant nous focaliser sur un système micellaire dilué. Nous allons également changer de type de système et passer d'une solution de CTAB- $\text{NaNO}_3$  à une solution d'hexadecyltriméthylammonium p-toluenesulfonate (CTAT).

## 5.4 Régime dilué

Dans cette partie, nous allons nous concentrer sur un système micellaire dilué connu pour générer des structures induites par le cisaillement (notées par la suite SIS pour « Shear-Induced Structures » en anglais) en combinant simultanément la rhéométrie et l'imagerie ultrasonore. Nous montrerons que des instabilités d'écoulement peuvent intervenir lorsque le nombre de Reynolds et le nombre de Weissenberg sont tous les deux grands. De plus, nous verrons qu'avant la nucléation de ces SIS, l'écoulement peut être éventuellement instable inertiellement, mais qu'une fois que les SIS sont formées l'écoulement devient chaotiques. Le motif observé est alors dominé par l'élasticité comme nous avons pu le voir dans des solutions de polymères diluées (voir le chapitre 4). Nous finirons par une synthèse sur l'interaction entre les instabilités d'écoulement et les structures induites par l'écoulement.

### 5.4.1 Rhéologie non-linéaire et shear-induced structures

Pour cette étude, l'échantillon que nous avons utilisé est constitué d'hexadecyltriméthylammonium p-toluenesulfonate (CTAT) dissout dans de l'eau. Dans ce système

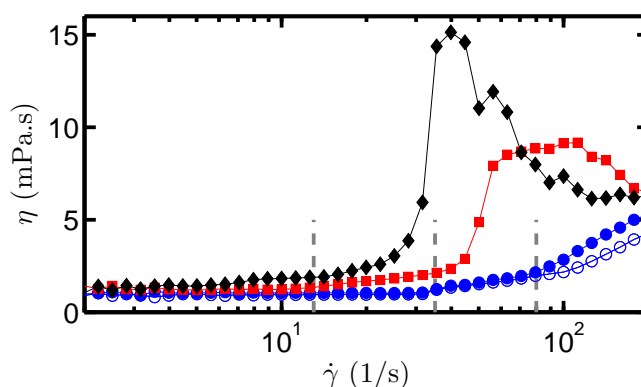


FIGURE 5.20 – **Courbe d'écoulement d'une solution diluée de micelles générant des structures induites par cisaillement.** Viscosité  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  à différentes températures  $T = 20$  (◆),  $25$  (■), et  $30^\circ\text{C}$  (●) pour une solution de CTAT à 0,16% en masse ensemencée de billes de polyamide à 1% en masse (voir texte). ○ correspond à une solution de CTAT sans agent de contraste acoustique à  $T = 30^\circ\text{C}$ . L'ajout de billes de polyamide augmente la viscosité d'environ 15% mais ne modifie pas le comportement général. Cette courbe d'écoulement a été obtenue en augmentant par sauts le taux de cisaillement selon un échantillonnage logarithmique (15 s par point et moyenné sur les 5 dernières secondes). Les lignes verticales en pointillés indiquent le commencement du rhéo-épaississement  $\dot{\gamma}_c \simeq 13$ , 35, et  $80 \text{ s}^{-1}$  respectivement pour les températures  $T = 20$ , 25, et  $30^\circ\text{C}$ . Ces valeurs ont été obtenues à partir des expériences de démarrage d'une durée d'environ 500 s.

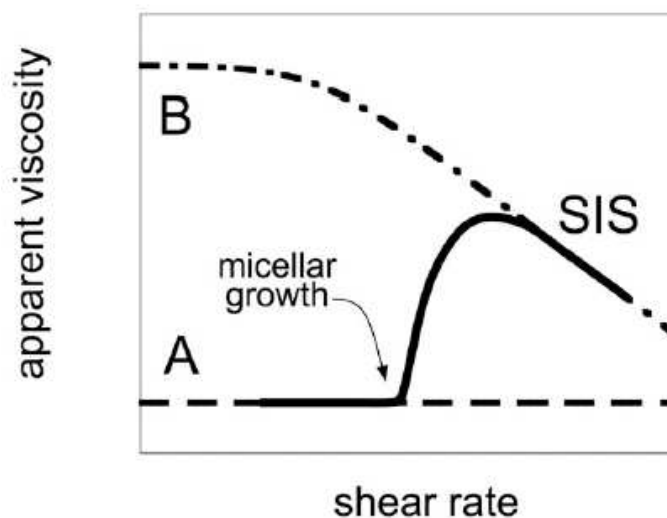


FIGURE 5.21 – **Courbe d'écoulement modèle d'une solution diluée de micelles générant des structures induites par cisaillement.** La courbe A montre l'évolution de la viscosité apparente d'une solution de micelles sous forme de bâtonnets qui ne génèrent pas de SIS. La courbe B illustre le comportement rhéofluidifiant de la même solution mais pour laquelle les micelles sont longues et enchevêtrées. À la transition le fluide passe de la branche A à B. Figure tirée de [Lerouge et Berret, 2010].

référence en matière de fluides micellaires diluées [Lerouge et Berret, 2010], le rhéo-épaississement est observé pour des concentrations de 0,005-0,8% en masse [Gamez-Corrales et al., 1999; Truong et Walker, 2000]. La figure 5.20 montre l'évolution de la viscosité  $\eta$  de notre échantillon, à 0,16% en masse, en fonction du taux de cisaillement appliqué  $\dot{\gamma}$  pour trois températures différentes  $T=20, 25$  et  $30^\circ\text{C}$ , mettant en évidence le comportement typique de rhéo-épaississement de nos systèmes micellaires dilués (voir la figure 5.21 et [Lerouge et Berret, 2010], pour une revue). L'évolution de la viscosité  $\eta$  peut se découper de la manière suivante :

- pour des taux de cisaillement faibles ( $\dot{\gamma} < 20 \text{ s}^{-1}$ , la viscosité reste constante et est proche de celle de l'eau,
- à un taux de cisaillement caractéristique  $\dot{\gamma}_c$ , qui augmente avec la température ( $\dot{\gamma}_c \simeq 13, 35$ , et  $80 \text{ s}^{-1}$  respectivement pour les températures  $T = 20, 25$ , et  $30^\circ\text{C}$ ), on observe un saut en  $\eta$ ,
- finalement à haut taux de cisaillement, la courbe d'écoulement montre une branche rhéo-fluidifiante où la viscosité diminue.

Rehage et Hoffmann [1982b] furent les premiers à expliquer ce comportement en postulant la formation de structures induites par cisaillement : au-dessus de  $\dot{\gamma}_c$  les micelles croissent en longueur et transitent de structures en bâtonnets (« rodlike micelles » en anglais) vers des structures vermiculaires (« wormlike micelles » en anglais). Ce scénario microscopique a été confirmé ensuite par des expériences de diffusion de neutrons [Gamez-Corrales et al., 1999]. L'état induit par cisaillement est ensuite suivi d'une rhéo-fluidification due à l'alignement des longues micelles cylindriques. Ici, en l'absence de visualisation directe de changements structuraux microscopiques, nous allons simplement déduire ces changements microscopiques grâce à la similitude entre nos mesures rhéologiques et la littérature [Boltenhagen et al., 1997b; Hu et al., 1998b; Lerouge et Berret, 2010].

Comme pour les expériences précédentes, le fluide est cisailé dans une cellule de Taylor-Couette (TC) adaptée à un rhéomètre (ARG2, TA Instruments) dont les dimensions sont  $H = 60 \text{ mm}$  de hauteur,  $d = 2 \text{ mm}$  d'entrefer et  $R_i = 23 \text{ mm}$  pour le rayon du cylindre intérieur. De plus, dans le but de visualiser les écoulements secondaires, nous utilisons ici la technique d'imagerie ultrasonore détaillée dans la partie 2. Les agents acoustiques ajoutés dans le fluide sont ici des sphères de polyamide (Arkema Orgasol 2002 ES 3 Nat 3, diamètre moyen  $30 \mu\text{m}$ , densité 1,03) dans une proportion de 1% en masse sans pour autant que cela affecte de manière significative la rhéologie de la solution. La figure 5.20 montre que pour une température  $T = 30^\circ\text{C}$ , l'ajout de billes de polyamide augmente la viscosité de la solution d'environ 15%. Cependant, le comportement global de la courbe d'écoulement n'est pas modifié et le seuil de formation des SIS reste le même d'environ  $80 \text{ s}^{-1}$  dans ce cas. Gardons à l'esprit que la vitesse mesurée ici est  $v = \frac{v_y}{\sin \phi} = v_\theta + \frac{v_r}{\tan \phi}$  qui coïncide avec la vitesse azimutale  $v_\theta$  dans le cas d'un écoulement purement azimutal  $\mathbf{v} = (0, v_\theta, 0)$ . Dans le cas général,  $v$  est une combinaison de deux contributions : une contribution provenant de la composante azimutale et une autre provenant de la composante radiale de la vitesse. Néanmoins, proche du seuil d'instabilité, les écoulements secondaires dirigés par  $v_r$  sont beaucoup plus faibles que l'écoulement principal et par conséquent  $v \simeq v_\theta$  [Gallot et al., 2013; Perge et al., 2014b].

La figure 5.20 montre que le seuil et l'intensité du rhéo-épaississement dû à la formation de SIS, dépend fortement de la température. Nous cherchons à comprendre comment interviennent les deux instabilités, inertielles et élastiques, lorsqu'on joue sur les paramètres suivants : température et taux de cisaillement.

### 5.4.2 Dynamique spatio-temporelle de l'écoulement du CTAT

La figure 5.22(b) montre la dynamique spatio-temporelle de l'écoulement du CTAT à  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$  pour une température  $T = 25^\circ\text{C}$ . À ce taux de cisaillement et à cette température, nous sommes en dessous des taux de cisaillement critiques  $\dot{\gamma}_c$  et  $\dot{\gamma}_{TVF}$  qui sont respectivement les seuils de formation des SIS et des rouleaux de Taylor inertiel. De ce fait, l'écoulement reste laminaire et purement azimutal. Aucune structure ne se forme dans les directions  $z$  et  $r$ . Le niveau de contrainte reste faible et constant [Fig.5.22(b)].

La figure 5.22(g) montre le démarrage en écoulement du CTAT à  $T = 25^\circ\text{C}$  et  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$  (voir aussi la vidéo supplémentaire 14). Aux temps très courts, une couche limite laminaire se propage du cylindre intérieur vers le cylindre extérieur. Puis pour  $t \gtrsim 3 \text{ s}$ , un écoulement en rouleaux de Taylor se développe déformant ainsi l'écoulement principal qui devient périodique le long de  $z$ . Cette séquence initiale d'événements est exactement la même que celle que nous avons observé dans de l'eau pure [Gallot et al., 2013]. Le fait de retrouver des rouleaux de Taylor pour des micelles diluées n'est guère surprenant puisque dans cette première partie de l'expérience le fluide est seulement influencé par l'inertie. En effet on a :  $Ta = \Lambda^{1/2} Re \simeq 60 > Ta_c$  pour  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ . L'élasticité est alors négligeable. Pour calculer le temps de dissipation visqueuse  $\tau$ , nous avons utilisé la viscosité dynamique relevée aux temps courts, c'est-à-dire la viscosité à taux de cisaillement nul  $\eta_0 \simeq 1 \text{ mPa.s}$ . Comme le montre la figure 5.22(h), le seuil de l'instabilité de Taylor à  $t \simeq 3 \text{ s}$  correspond à une faible augmentation de la contrainte de cisaillement (après un pic initial dû à la rétroaction avec l'inertie du rhéomètre). Cette première augmentation de la contrainte est simplement due à la formation des rouleaux brisant l'hypothèse viscométrique. À l'inverse, pour  $t \gtrsim 10 \text{ s}$ , la contrainte (et par conséquent la viscosité) augmente bien plus fortement. Étant donné que  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$  correspond à la gamme de taux de cisaillement où le rhéo-épaississement apparaît pour  $T = 25^\circ\text{C}$  (voir Fig.5.20), cette séquence d'événements peut être attribuée à la formation lente des SIS. Toujours est-il qu'on voit que la structure des rouleaux est perturbée puis détruite. La forme bien définie des rouleaux (longueur d'onde et amplitude) représentée sur la carte du champ de vitesse [voir Fig.5.22(h) à gauche] est perdue et l'écoulement passe progressivement d'un écoulement avec rouleaux à un écoulement chaotique représenté [voir Fig.5.22(h) à droite]. Ce dernier état est caractéristique de l'état de turbulence inertio-élastique appelé « disordered oscillation » [Groisman et Steinberg, 1996] ou encore « elastically dominated turbulence » [Dutcher et Muller, 2013].

À  $T = 25^\circ\text{C}$ , le taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  pour la formation des SIS et le taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_{TVF} \equiv Ta_c/(\tau\Lambda^{1/2})$  pour le seuil des TVF sont à peu près les mêmes  $\dot{\gamma}_c \simeq \dot{\gamma}_{TVF} \simeq 35 \text{ s}^{-1}$  dans notre géométrie ( $\Lambda^{1/2} \simeq 0,29$ ). Dans le but de dissocier l'écoulement inertiel de Taylor en rouleaux et la turbulence associée aux SIS, nous avons reproduit des protocoles de démarrage en écoulement similaires à deux



autres températures  $T = 20$  et  $T = 30^\circ\text{C}$  comme le montrent les figures 5.22(c,d) et 5.22(e,f). En augmentant la température, la viscosité à cisaillement nul diminue légèrement (Fig.5.20). Par conséquent, le seuil de l'instabilité inertielle  $\dot{\gamma}_{\text{TVF}}$  décroît de  $45 \text{ s}^{-1}$  pour  $T = 20^\circ\text{C}$  à  $33 \text{ s}^{-1}$  pour  $T = 30^\circ\text{C}$ . En revanche, le même changement de température a un plus grand impact sur  $\dot{\gamma}_c$ . Comme il est rapporté dans la littérature [Lerouge et Berret, 2010], le fait de diminuer la température facilite la formation des SIS et par conséquent diminue les valeurs du seuil  $\dot{\gamma}_c$ . La figure 5.20 indique  $\dot{\gamma}_c \simeq 13$  et  $80 \text{ s}^{-1}$  pour respectivement  $20^\circ\text{C}$  et  $30^\circ\text{C}$ . De plus, à la plus haute température étudiée ici ( $30^\circ\text{C}$ ), on devrait être capable de visualiser l'écoulement en rouleaux de Taylor sans former de SIS tandis qu'à  $20^\circ\text{C}$ , on s'attend à former des SIS sans générer d'instabilité de Taylor. Ce scénario est confirmé par les figures 5.22(c,d) et 5.22(e,f) où l'on compare les dynamiques spatio-temporelles pour des taux de cisaillement tels que  $\dot{\gamma}_{\text{TVF}} < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$  et  $\dot{\gamma}_c < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_{\text{TVF}}$  respectivement à  $T = 30$  et  $20^\circ\text{C}$ .

Le fait que les SIS et le TVF peuvent apparaître séparément est une indication que ces deux phénomènes ne sont pas des conséquences l'un de l'autre. Les SIS n'ont pas besoin d'une instabilité de Taylor pour se former. La transition hors équilibre des micelles de bâtonnets en vermicelles est donc bien pilotée par l'écoulement de cisaillement de base [Lerouge et Berret, 2010]. Les mesures de vitesses préliminaires uni-dimensionnelle à une seule hauteur  $z$  montraient que les SIS se forment d'abord à la paroi intérieure et génèrent un glissement important à la paroi [Koch et al., 1998; Hu et al., 1998a; Boltenhagen et al., 1997a]. Pour le vérifier, nous calculons la vitesse de glissement adimensionnée  $v_s$  de la manière suivante. Des ajustements linéaires des profils de vitesse  $v(r, z)$  sur environ  $300 \mu\text{m}$  à partir du rotor dans la direction radiale  $r$  sont utilisés pour estimer le taux de cisaillement local proche de chaque paroi et extrapoler les vitesses du fluides :  $v(r = 0, z)$  et  $v(r = d, z)$ . La vitesse adimensionnée de glissement total aux parois est calculée de la manière suivante :

$$v_s = 1 - [\langle v(r = 0, z) \rangle_z - \langle v(r = d, z) \rangle_z] / \Omega R_i \quad (5.5)$$

où la moyenne est prise sur les 128 mesures simultanées le long de la direction verticale  $z$  enregistrées par notre sonde ultrasonore. Les barres d'erreur sur la figure 5.22(g) indiquent la déviation standard le long de  $z$ . Ainsi les figures 5.22(e) et (g) confirment que l'augmentation de la vitesse de glissement est liée avec la formation des SIS alors qu'aucun glissement notable n'est relevé lors de la formation des rouleaux de Taylor. La vidéo 13 met aussi clairement en évidence l'expansion radiale des SIS à travers la croissance d'une région faiblement cisillée à partir du rotor pour  $t \simeq 130\text{--}200 \text{ s}$ . L'apport de ce travail montre que la nucléation des SIS le long de la direction verticale  $z$  est elle-même hétérogène. En effet la figure 5.22(f) montre que les SIS se forment d'abord depuis les extrémités hautes et basses de la cellule avant d'envahir progressivement l'ensemble de l'entrefer.

Bien évidemment, l'instabilité de Taylor n'a pas besoin des SIS pour se développer puisqu'elle peut apparaître même dans un fluide simple comme l'eau. De plus, on remarque que les structures spatio-temporelles de l'écoulement pour les figure 5.22(h) à droite et 5.22(d) sont très similaires. Ceci montre que c'est bien l'inertie qui est prédominante dans l'instabilité de l'écoulement qui se met en place avant la formation des SIS. Enfin la présence de rouleaux de Taylor avant la formation des SIS a un impact

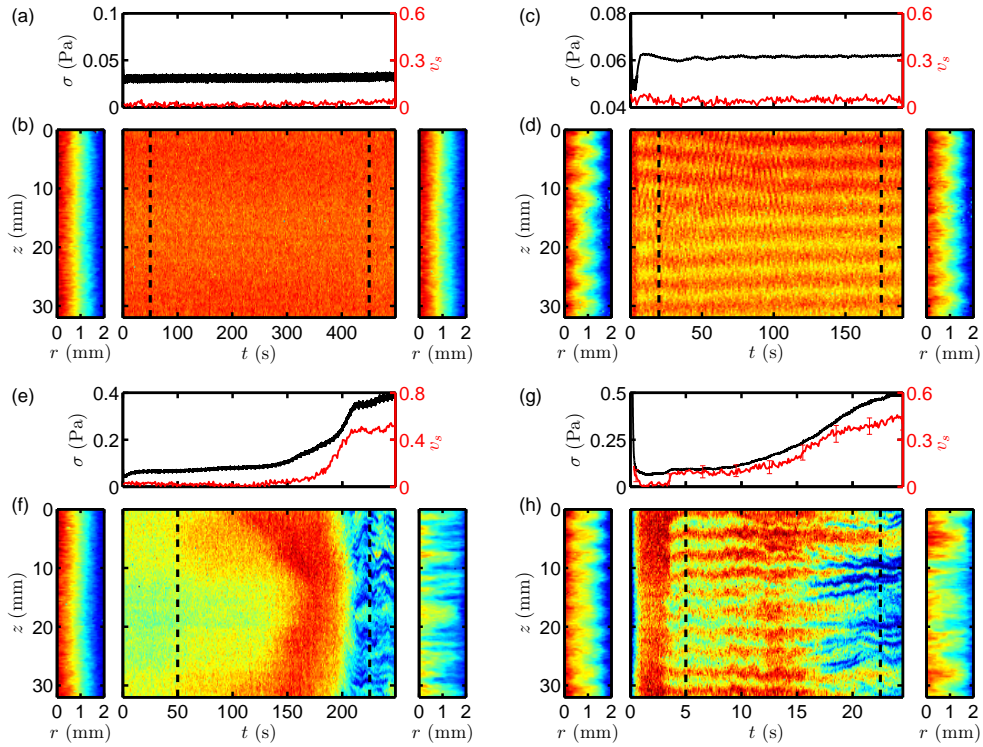


FIGURE 5.22 – **Dynamiques spatio-temporelles du CTAT.** (a,c,e,g) Contrainte globale  $\sigma(t)$  mesurée par le rhéomètre (en noir) et vitesses de glissement adimensionnées  $v_s(t)$  (en rouge). (b,d,f,h) Diagrammes spatio-temporels de la vitesse  $v(r_0, z, t)$  où  $r_0$  est la distance radiale au rotor. Les lignes en pointillés indiquent les temps  $t_0$  correspondant aux images de vitesse  $v(r, z, t_0)$  à gauche et à droite du diagramme. (a,b)  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$  : l'écoulement est laminaire. En (b)  $r_0 = 0,38 \text{ mm}$  et  $t_0 = 50$  (gauche) et  $450 \text{ s}$  (droite). (c,d)  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$  : l'écoulement présente uniquement une instabilité inertielle avec des rouleaux de Taylor. En (d)  $r_0 = 0,40 \text{ mm}$  et  $t_0 = 20$  (gauche) et  $175 \text{ s}$  (droite). (e,f)  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} = 40 \text{ s}^{-1}$  : l'écoulement développe progressivement des structures induites par le cisaillement qui conduisent à une instabilité à dominante élastique sans avoir développé initialement des rouleaux de Taylor. En (f)  $r_0 = 0,53 \text{ mm}$  et  $t_0 = 50$  (gauche) et  $225 \text{ s}$  (droite). (g,h)  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$  : dans un premier temps l'écoulement est instable inertielle et présente des rouleaux de Taylor puis il devient instable élastiquement à cause de la formation de SIS. En (h)  $r_0 = 0,20 \text{ mm}$  et  $t_0 = 5$  (gauche) et  $22,5 \text{ s}$  (droite). L'échelle de couleurs est linéaire et va de 0 à  $\Omega R_i$  pour toutes les images de vitesse  $v(r, z, t_0)$ . Elle est comprise entre 0 et  $\Omega R_i$  [respectivement 0 et  $\Omega R_i/8$ ; 0 et  $\Omega R_i/4$ ;  $0,5\Omega R_i$  et  $\Omega R_i$ ] pour les diagrammes spatio-temporels (b) [respectivement (d); (f); (h)]. (voir aussi les vidéos supplémentaires 12, 13 et 14).

négligeable sur l'écoulement élastiquement turbulent observé à la fin de l'expérience de la figure 5.22(h).

### 5.4.3 Temps de nucléation

Dans une solution diluée rhéo-épaississante de surfactant, à la fois le temps de dissipation visqueuse  $\tau$  et le temps de relaxation viscoélastique  $\tau_s$  dépendent de  $\dot{\gamma}$  et de

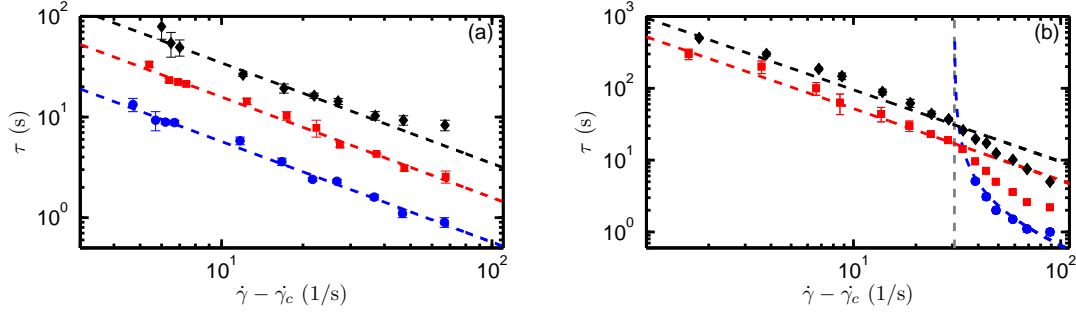


FIGURE 5.23 – Temps de nucléation de l’instabilité inertielle  $\tau_{VF}$ , des structures induites sous cisaillement  $\tau_{SIS}$  et de l’instabilité élastique  $\tau_{ET}$  en fonction du taux de cisaillement pour une solution de CTAT. (a)  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma}_{VF} \simeq \dot{\gamma}_c \simeq 33,0 \pm 0,3 \text{ s}^{-1}$  : les seuils de développement de l’instabilité inertielle et de formation des SIS sont comparables.  $\tau_{VF}$ ,  $\tau_{SIS}$  et  $\tau_{ET}$  suivent une loi de la forme  $\tau \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$  (ligne en pointillés). (b)  $T = 20^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma}_c \simeq 11,3 \pm 0,2 \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma}_{VF} \simeq 41 \pm 2 \text{ s}^{-1}$  : pour  $\dot{\gamma}_c < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_{VF}$  seules les SIS se forment et conduisent à la turbulence élastique et  $\tau_{SIS}$  et  $\tau_{ET}$  suivent une loi de la forme  $\tau \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$  (ligne en pointillés). Pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_{VF}$ , l’instabilité inertielle apparaît en premier et accélère la formation des SIS et par conséquent de la turbulence élastique.

$t$  et par conséquent  $Re$ ,  $Wi$ , et  $\mathcal{E}$  dépendent aussi de  $\dot{\gamma}$  et de  $t$ . Pour illustrer cela, on peut évaluer grossièrement la valeur de  $\mathcal{E}$  dans le cas de la figure 5.22(g,h) ( $T = 25^\circ\text{C}$  et  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ ). En supposant que la densité du fluide reste constante durant la formation des SIS, estimons dans un premier temps le nombre de Reynolds :  $Re \simeq \dot{\gamma}_t \rho d^2 / \eta_t$ , où  $\dot{\gamma}_t(\dot{\gamma}, t) = \dot{\gamma} - v_s(t)\Omega R_i / d$  est le « vrai » taux de cisaillement corrigé du glissement aux parois et  $\eta_t(\dot{\gamma}, t) = \sigma(t) / \dot{\gamma}_t(\dot{\gamma}, t)$  est la « vraie » viscosité correspondante. Ce nombre de Reynolds passe de  $Re \simeq 200$  avant la formation des SIS à  $Re \simeq 7$  dans l’état final. Estimer le temps de relaxation viscoélastique  $\tau_s$  est plus compliqué. Nous choisissons le plus long temps de relaxation de la contrainte après un arrêt brutal de l’écoulement avant et après la formation des SIS. On obtient  $Wi = \dot{\gamma}_t \tau_s \simeq 0$  avant et  $Wi \simeq 100$  après la formation des SIS ce qui est en accord avec la littérature [Lerouge et Berret, 2010]. Par conséquent, au début de l’expérience  $\mathcal{E} \simeq 0$  : l’inertie est dominante, alors qu’après la formation des SIS  $\mathcal{E} \gtrsim 10$  : l’élasticité prédomine. Ainsi, la dynamique de la figure 5.22(h) peut être vue comme la superposition des dynamiques des figures 5.22(d) et 5.22(f). Cette superposition apparaît comme linéaire seulement parce que l’écoulement en rouleaux initial caractéristique de l’instabilité purement inertielle ( $\mathcal{E} \ll 1$ ) transite rapidement vers une instabilité purement élastique ( $\mathcal{E} \gg 1$ ) grâce à la formation rapide des SIS.

Notons que, dans la figure 5.22(f) les SIS se forment beaucoup plus lentement (environ 200 s) que dans l’expérience de la figure 5.22(h) (environ 25 s). Ceci s’explique de la manière suivante. Dans le premier cas,  $\dot{\gamma} \gtrsim \dot{\gamma}_c$  et il est bien connu que le temps de formation des SIS suit une loi de la forme  $\tau \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$  [Lerouge et Berret, 2010]. Les figures 5.23(a) et 5.23(b) présentent l’évolution des temps de nucléation de l’instabilité inertielle ( $\tau_{TVF}$ ) de la formation des SIS ( $\tau_{SIS}$ ) et de la transition vers la turbulence élastique ( $\tau_{EDT}$ ) respectivement pour les températures  $T = 25^\circ\text{C}$  et  $T = 20^\circ\text{C}$ . Dans le premier cas où  $\dot{\gamma}_c \simeq \dot{\gamma}_{VF}$  la loi suivie par les trois temps est celle attendue :  $\tau \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$  [Fig.5.23(a)] [Boltenhagen et al., 1997b; Hu et al., 1998b]. Par contre

dans le cas à  $T = 20^\circ\text{C}$  où  $\dot{\gamma}_c < \dot{\gamma}_{VF}$ , la formation des SIS apparaît pour des taux de cisaillement plus faibles. On remarque alors que tant que  $\dot{\gamma}_c < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_{VF}$ , les SIS se forment selon un temps de nucléation conforme à la loi ci-dessus, mais dès que  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_{VF}$  les rouleaux de Taylor se mettent en place et en se développant avant la formation des SIS, ils ont tendance à accélérer le processus de croissance en longueur des micelles et à conduire plus rapidement à une instabilité de type élastique [Fig.5.23(b)]. On note alors un écart à la courbe des temps de nucléation  $\tau_{SIS}$  et  $\tau_{EDT}$  avec des valeurs plus faibles que celles prédites par la loi  $\tau \sim (\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_c)^{-1}$ . L'évolution de  $\tau_{TVF}$  n'est quant à elle pas modifiée, elle suit toujours une loi en  $(\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_{TVF})^{-1}$  qui n'est pas représentée par une droite sur la figure 5.23(b) puisqu'à  $20^\circ\text{C}$  on a  $\dot{\gamma}_c \neq \dot{\gamma}_{TVF}$ .

#### 5.4.4 Conclusion et diagramme de stabilité du CTAT

Pour conclure, le diagramme de stabilité de la figure 5.24 résume l'interaction entre l'instabilité inertielle (TVF) et l'instabilité élastique des SIS. Les diverses expériences effectuées à différents taux de cisaillement et différentes températures délimitent ainsi quatre domaines : (1) un domaine où l'écoulement reste laminaire, (2) un domaine où les instabilités inertielles (TVF) peuvent se développer sans formation de SIS, (3) un domaine où la formation de SIS conduit à des instabilités élastiques sans développement préalable d'instabilités inertielles de type TVF et enfin (4) un domaine où des rouleaux de Taylor se développent en premier lieu puis la formation de SIS transpose cette instabilité inertielle en instabilité élastique et conduit à une turbulence dominée élastiquement. Notons ici qu'il est préférable de parler de VF plutôt que de TVF dans le domaine (2) car comme nous l'avons vu précédemment les rouleaux de Taylor ne sont stables que sur une plage de taux de cisaillement relativement étroite et très vite ils sont déstabilisés et se mettent à osciller. On pourrait de ce fait diviser ce domaine (2) en plusieurs sous-domaines. C'est cette succession d'instabilités (TVF, WVF...) qui rend délicate la détermination des temps de nucléation à  $T = 30^\circ\text{C}$ . En effet, si pour  $T = 20^\circ\text{C}$  et  $T = 25^\circ\text{C}$ , la transition est franche, pour  $T = 30^\circ\text{C}$  la formation des SIS est noyée dans le développement d'instabilités secondaires qui se mettent en place au sein de l'écoulement. Dans ces expériences, le nombre de Taylor critique purement inertiel devient clairement inadapté dès lors que les SIS nucléent. Au voisinage du seuil où les deux instabilités interagissent (voir les lignes noires de la figure 5.24 on observe une superposition inertio-élastique complexe comme l'a montré la figure 5.22(h).

Nous voyons une nouvelle fois ici que l'interaction entre l'inertie et l'élasticité suggère de définir un nombre de Taylor généralisé,  $Ta = \Lambda^{1/2} f(Re, Wi)$ , avec  $\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} f(Re, Wi) = Re$  et  $\lim_{\varepsilon \rightarrow \infty} f(Re, Wi) = Wi$  [Morozov et van Saarloos, 2007]. Proposer une expression analytique de la fonction  $f$  ainsi qu'un critère de stabilité universel apparaît comme le prochain défi théorique à partir duquel il serait possible de prédire les différentes frontières de la figure 5.24.

Notons enfin que les résultats obtenus sur la solution micellaire de CTAT ont fait l'objet d'une publication dans le journal Physical Review E [Fardin et al., 2014b].

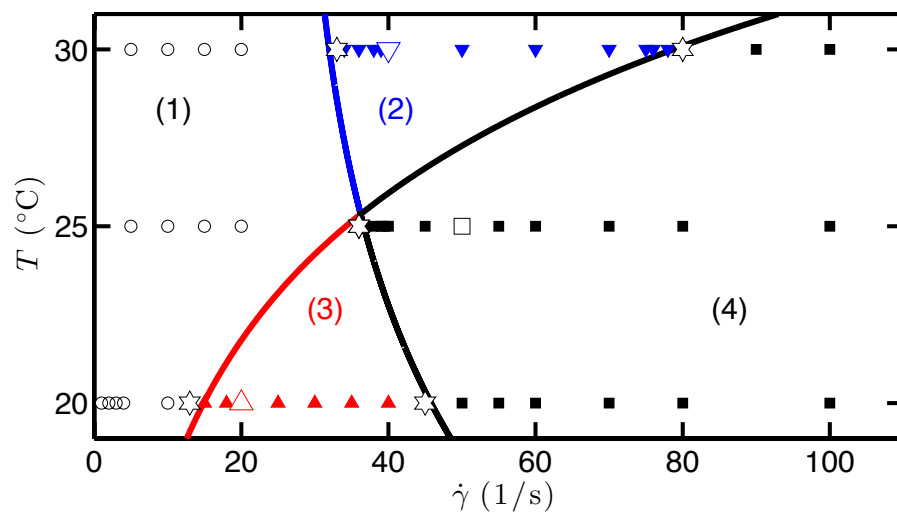


FIGURE 5.24 – **Diagramme de stabilité du CTAT :  $T(^{\circ}\text{C})$  en fonction de  $\dot{\gamma}$  ( $\text{s}^{-1}$ ).**  
 (1) Écoulement laminaire ( $\circ$ ). (2) Instabilités inertielles (VF) sans de SIS ( $\blacktriangledown$ ). (3) Formation de SIS puis d'instabilités à dominante élastique sans développement préalable de VF ( $\blacktriangle$ ). (4) Transition d'instabilités inertielles vers élastiques en passant par la formation de SIS ( $\blacksquare$ ). Les symboles pleins et plus gros correspondent aux expériences montrées sur la figure 5.22. Les lignes sont des guides pour les yeux.

# Chapitre 6

## Bilan de la partie II et ouverture sur la turbulence élastique

Dans cette partie, nous avons étudié différents systèmes allant d'une solution newtonienne à une solution micellaire semi-diluée en passant par des solutions de polymères et des solutions micellaires diluées. L'ensemble des résultats obtenus est résumé dans le tableau de la figure 6.1. Nous avons vu que selon le nombre d'élasticité, les transitions vers des écoulements instables sont différentes et ne repassent pas forcément par les mêmes états. La structure des rouleaux ou des « diwhirls » formés est modifiée lorsque l'élasticité du système augmente. Notamment, on observe une asymétrie des rouleaux de plus en plus prononcée lorsqu'on passe du régime dilué au régime semi-dilué d'un système micellaire. Dans certains cas, la présence d'hystérésis dans la courbe d'écoulement engendre une perte du caractère supercritique de la bifurcation vers des écoulements instables. Enfin, la comparaison de la turbulence élastique et inertio-élastique notamment dans les polymères PAAm et dans la solution micellaires  $[\text{CTAB}] = 0,1 \text{ M}$ ,  $[\text{NaNO}_3] = 0,3 \text{ M}$  doit faire l'objet d'une étude plus approfondie.

Tous ces résultats sur les solutions micellaires ont été obtenus en collaboration directe avec Marc-Antoine FARDIN (post-doctorant depuis octobre 2012), spécialiste de ces systèmes. Il a pu ainsi m'orienter dans mes recherches pour conduire rapidement à des expériences pertinentes. Les discussions que j'ai pu avoir avec lui au quotidien ont été d'une grande aide pour la compréhension, l'interprétation et la synthèse de ces résultats.

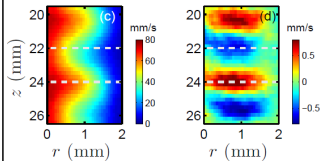
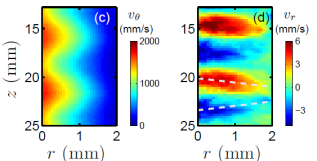
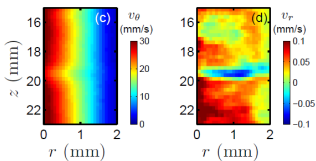
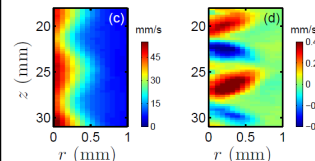
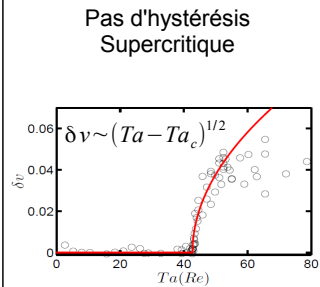
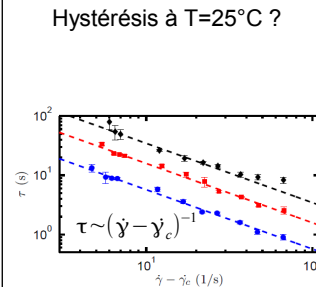
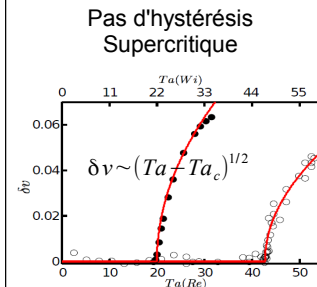
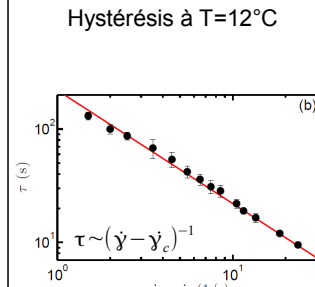
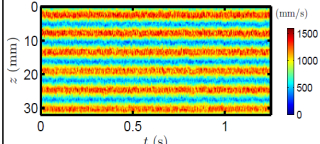
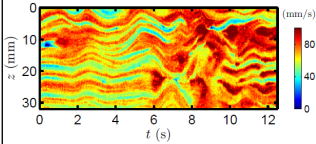
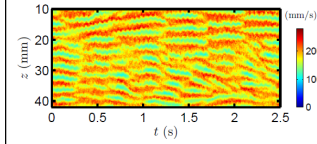
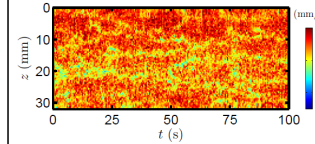
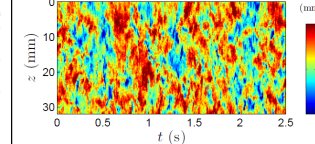
Solution	Eau	CTAT	CTAB-NaNO <sub>3</sub>	PAAM	CTAB-NaNO <sub>3</sub>
Concentration	-	0,16%	0,1 M – 0,3 M	80 ppm / 18MDa	0,3 M – 0,4 M
Elasticité	$\epsilon = 0$	$\epsilon \approx 0$ sans SIS $\epsilon \approx 10$ avec SIS	$\epsilon \approx 1$	$\epsilon \approx 10$	$\epsilon \approx 500$
Transitions	CF↑TVF↑WVF↑MW↑TTV	dépend de la température CF↑VF↑SIS↑ET à T=25°C	CF↑SV↑DRSW↑EDT	CF↑DO↓DW↓CF	CF↑SB↑EDT
Structure des rouleaux ou diwhirls	Centrifuge $\geq$ centripète ; symétriques 	Sans SIS : VF ~ TVF Avec SIS : pas stable → ET	Centrifuge $\leq$ centripète ; asymétriques 	Centrifuge $\leq$ centripète ; asymétriques 	Centrifuge $\leq$ centripète ; asymétriques 
Bifurcation ou route vers la turbulence	Pas d'hystérésis Supercritique 	Hystérésis à T=25°C ? 	Pas d'hystérésis Supercritique 	Hystérésis à T=12°C 	Pas d'hystérésis Supercritique ? $\delta v \sim (Ta - Ta_c)^{1/2}$ ? Pas suffisamment de résolution dans la bande fluide instable.
Turbulence	T=20°C et $\dot{\gamma} = 800 s^{-1}$	T=20°C et $\dot{\gamma} = 60 s^{-1}$	T=30°C et $\dot{\gamma} = 1500 s^{-1}$	T=12,3°C et $\dot{\gamma} = 45 s^{-1}$	T=28°C et $\dot{\gamma} = 140 s^{-1}$
Caractère	Rouleaux fantômes sur fond chaotique	Spatialement ~ cohérent Temporellement chaotique	Spatialement cohérent Temporellement chaotique	Spatialement ~ cohérent Temporellement chaotique	Spatialement chaotique Temporellement chaotique
Diagrammes spatio-temporel					

FIGURE 6.1 – Bilan sur les comportements observés sur les différents systèmes étudiés dans la partie II.

## Troisième partie

### FLUIDIFICATION ET RUPTURE DE SOLIDES MOUS





# Chapitre 7

## Fluidification d'un gel de noir de carbone sous contrainte oscillante

### Sommaire

---

<b>7.1</b>	<b>Présentation des fluides à seuil . . . . .</b>	<b>130</b>
<b>7.2</b>	<b>Présentation et propriétés du gel . . . . .</b>	<b>131</b>
7.2.1	État de l'art . . . . .	131
7.2.2	Propriétés rhéologiques d'un gel de noir de carbone . . . . .	132
<b>7.3</b>	<b>Matériel et méthodes pour une étude en LAOS-Stress . . . . .</b>	<b>135</b>
7.3.1	Protocole utilisé . . . . .	135
7.3.2	Problèmes potentiels rencontrés en LAOS-Stress . . . . .	136
7.3.3	Analyse des données de LAOS-Stress . . . . .	137
<b>7.4</b>	<b>Fluidification d'un gel de noir de carbone en LAOS-Stress . . . . .</b>	<b>141</b>
7.4.1	Rampe en contrainte de cisaillement . . . . .	141
7.4.2	Expérience en contrainte oscillante d'amplitude constante . . . . .	142
7.4.3	Imagerie ultrasonore de la fluidification . . . . .	148
<b>7.5</b>	<b>Scénario de mise en écoulement . . . . .</b>	<b>153</b>
7.5.1	Mise en évidence de deux échelles de temps . . . . .	153
7.5.2	Comparaison entre les scénarii local et global . . . . .	154
<b>7.6</b>	<b>Influence de la contrainte, de la fréquence et de la concentration . . . . .</b>	<b>155</b>
7.6.1	Un scénario de fluidification qui dépend de $\sigma_0$ . . . . .	155
7.6.2	Vers une modélisation . . . . .	159
7.6.3	Apparition de forces normales lors de la coexistence fluide-solide . . . . .	162
7.6.4	Influence de la fréquence d'oscillation et de la concentration . . . . .	162
7.6.5	Sollicitation en contrainte oscillante : disparition du seuil en amplitude ? . . . . .	164
<b>7.7</b>	<b>Bilan général du chapitre . . . . .</b>	<b>165</b>

---

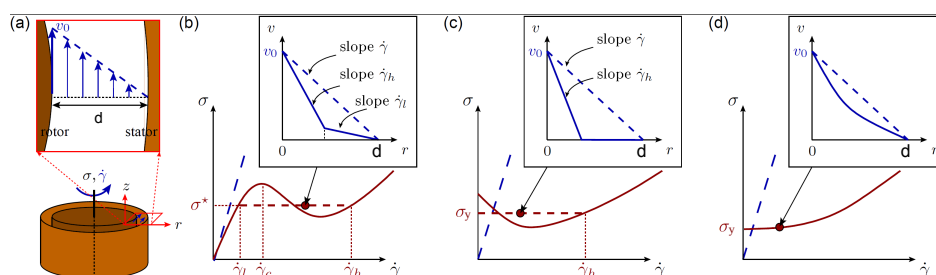


FIGURE 7.1 – **Courbes d'écoulement et profils de vitesse pour différents types de fluides complexes.** (a) Cisaillement en géométrie de Taylor-Couette. Courbes d'écoulement  $\sigma$  vs  $\dot{\gamma}$  et profils de vitesse  $v(r)$  attendus pour (b) une solution de micelles géantes (c) un fluide à seuil présentant des bandes de cisaillements à l'état stationnaire et (d) un fluide à seuil simple présentant un profil de vitesse homogène. Les pointillés bleus indiquent le cas d'un fluide newtonien.

## 7.1 Présentation des fluides à seuil

Les émulsions et les suspensions concentrées, les gels colloïdaux ou encore les mousses sont des matériaux dont la microstructure est désordonnée et qui présentent des caractéristiques de solides élastiques au repos. Lorsqu'on leur applique une contrainte  $\sigma$  supérieure à une certaine *contrainte seuil*  $\sigma_y$ , ils sont susceptibles de s'écouler comme des liquides. Leur courbe d'écoulement, schématisée sur la figure 1.7 et sur la figure 7.1(c) peut être vue comme analogue à celle des « micelles géantes », discutées au chapitre 5, dans la limite où  $\dot{\gamma}_l \rightarrow 0$  et en considérant  $\sigma_y = \sigma^*$ . La contrainte seuil du fluide à seuil  $\sigma_y$  correspond alors à la contrainte  $\sigma^*$  du plateau dans la courbe d'écoulement des micelles géantes. On peut donc s'attendre à la présence d'écoulements en bandes de cisaillement où une partie du matériau, qui se comporte comme un solide au repos et n'est pas cisailée ( $\dot{\gamma}_l = 0$ ), coexiste avec une autre partie cisailée à  $\dot{\gamma}_h$ . Une telle *localisation du cisaillement* a été effectivement observée dans divers matériaux mous vitreux comme des suspensions d'argiles synthétiques (laponite ou bentonite) [Coussot et al., 2002] ou des gels de silice colloïdale [Møller et al., 2008]. Dans ce dernier cas, la branche décroissante sous-jacente à la courbe d'écoulement a même pu être mise en évidence grâce à des mesures rhéologiques transitoires.

Si ce scénario de bandes de cisaillement stationnaires semble largement répandu, il n'est toutefois pas universel au sein des matériaux mous vitreux puisqu'il existe une classe de matériaux à seuil dits « simples » qui ne présentent pas de coexistence solide-liquide à l'état stationnaire. Pour ces derniers, la courbe d'écoulement peut être vue comme la limite de la précédente pour  $\dot{\gamma}_h \rightarrow 0$  [Fig.7.1(d)]. Dans l'analogie avec les transitions de phase déjà évoquée plus haut, ce cas correspond à une transition de phase du second ordre et le point ( $\dot{\gamma} = 0, \sigma = \sigma_y$ ) à un point critique. Toutefois, la question reste ouverte de savoir exactement ce qui dans la microstructure du matériau mou vitreux pilote le comportement de fluide à seuil simple, caractérisé par une courbe d'écoulement monotone et croissante généralement bien modélisée par la loi d'Herschel-Bulkley,  $\sigma = \sigma_y + A\dot{\gamma}^n$ , et par un état stationnaire homogène ou plutôt un comportement en bandes de cisaillement [Coussot et Ovarlez, 2010]. Il semblerait que la présence de liens attractifs entre constituants mésoscopiques [Bécu et al., 2004; Ragouilliaux et al.,

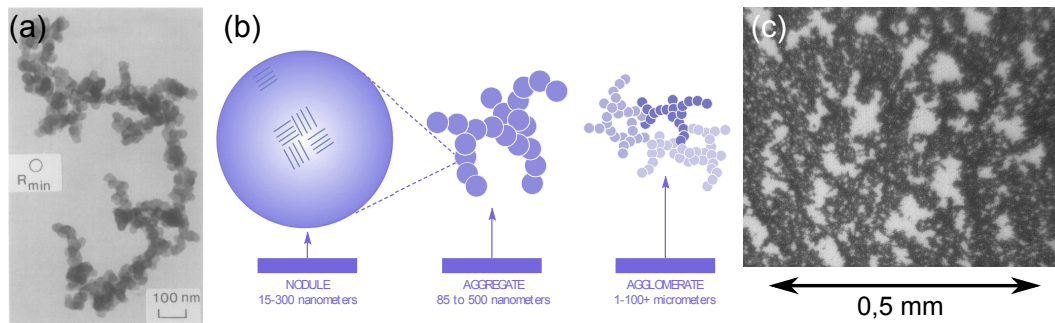


FIGURE 7.2 – **Visualisation et composition d'un gel de noir de carbone.** (a) Image au microscope électronique d'une particule de noir de carbone (photographie issue de Ehrburger-Dolle et al. [1990]). (b) Schéma illustrant la hiérarchie : élément unique (ou nodule) - agrégat (ou particule) - agglomérat dans les gels de noir de carbone (tiré du guide de l'utilisateur de l'International Carbon Black Association, <http://www.carbon-black.org>). (c) Image au microscope d'un gel de noir de carbone de concentration  $C=2\%$ .

2007], le confinement de la microstructure [Goyon et al., 2008] voire les conditions aux bords [Gibaud et al., 2008] jouent un rôle important.

Récemment, il a été proposé de diviser les fluides à seuil en deux catégories : (i) ceux qui, à cause d'un vieillissement ou des effets de mémoire, présentent des propriétés thixotropes (suspensions d'argile, gels colloïdaux, émulsions adhésives) et (ii) ceux où ces effets peuvent être négligés que l'on nomme fluide à seuil *simples* (mousses, microgels de carbopol, émulsions non-adhésives) [Ovarlez et al., 2013a; Divoux et al., 2010]. Alors que cette deuxième catégorie est étudiée dans l'annexe C à travers deux exemples : un microgel de carbopol et une émulsion non-adhésive qui sont tous deux des « gels » non vieillissants et non-thixotropes, nous allons nous pencher ici vers un autre type de fluide à seuil, un gel colloïdal de noir de carbone qui, contrairement au microgel de carbopol et à l'émulsion, présente des caractéristiques de thixotropie et ne se classe pas dans les fluides à seuil « simples ».

Dans ce chapitre, le gel, connu pour présenter une fluidification retardée en fluage, sera sollicité par une contrainte de cisaillement oscillante d'amplitude  $\sigma_0$  et de fréquence d'oscillation  $f$ . Dans un premier temps l'étude approfondie (en analyse de Fourier notamment) d'une expérience d'amplitude et fréquence constantes ( $\sigma_0 = 11$  Pa et  $f = 1$  Hz) sera présentée. La description des scénarii de fluidification locale du gel suivant la valeur de l'amplitude de la contrainte ainsi que l'influence d'autres paramètres tels que la fréquence d'oscillation et la concentration du gel sont discutées dans un second temps.

## 7.2 Présentation et propriétés du gel

### 7.2.1 État de l'art

Les particules de noir de carbone (« Carbon Black » en anglais, noté CB) sont des particules colloïdales qui résultent de la combustion partielle d'huiles d'hydrocarbures [van der Waarden, 1950; Samson et al., 1987]. Ces particules sont couramment

utilisées dans l'industrie et sont recherchées par exemple pour leurs propriétés mécaniques permettant de renforcer les pneus de voiture [Medalia et Heckman, 1969], pour leurs propriétés électriques rendant conducteurs des matériaux plastiques [Jager et McQueen, 2001; Pantea et al., 2003] ou encore pour leur propriétés optiques permettant la fabrication d'encre puisqu'elles absorbent fortement la lumière [Bond et Bergstrom, 2006; Chylek et al., 1995]. Une particule de noir de carbone est un agrégat insécable de sous-particules uniques nommées « nodules » dont la forme n'est pas forcément sphérique [voir les figures 7.2(a) et (b)]. La taille typique des particules de CB est comprise entre 80 et 500 nm et elles ont une dimension fractale de 2,2 [Trappe et Weitz, 2000]. Dispersées dans de l'huile minérale, les particules de noir de carbone interagissent via un potentiel attractif à courte portée dont la profondeur est estimée à  $30k_B T$  pour une suspension à 2% en masse [Trappe et al., 2007]. Ceci leur permet de s'agréger et de former un réseau fractal remplissant tout l'espace même à faible concentration. On obtient alors un gel de noir de carbone [voir Fig.7.2(c)].

Dans nos expériences, les particules de carbone (Cabot Vulcan XC72R, densité 1,8) sont dispersées dans une huile minérale (densité 0,838 et viscosité 20 mPa.s, Sigma Aldrich) à laquelle nous ajoutons préalablement 1% en masse de microsphères de billes creuses (Potters Spherical, diamètre moyen 6  $\mu\text{m}$ , densité moyenne 1,1  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) permettant d'assurer le contraste acoustique et d'utiliser la technique d'imagerie ultrasonore. Malgré la présence de ces traceurs acoustiques, les propriétés rhéologiques de la solution ne sont pas modifiées [Grenard et al., 2014]. Cette solution est dans un premier temps agitée vigoureusement à la main puis soniquée pendant une heure afin de casser tous les agglomérats de grande taille [Trappe et al., 2007]. Ce système possède deux avantages très pratiques : premièrement, il est chimiquement stable et deuxièmement, il est très faiblement sensible à l'évaporation. Ne présentant pas de vieillissement chimique significatif, un même gel peut être ainsi étudié pendant plusieurs semaines. Enfin, de manière à obtenir le même état initial, il faut prendre garde à appliquer un pré-cisaillement adéquat avant chaque expérience pour d'une part resuspendre les microsphères de verre et d'autre part de rajeunir le gel [Osuji et al., 2008; Ovarlez et al., 2013b] nous y reviendrons lors de la description précise du protocole utilisé.

Ce pré-cisaillement présente une importance capitale car à long terme le gel de noir de carbone s'effondre sur lui-même. Nous avons filmé durant plus d'un jour à l'aide d'une webcam standard (Logitech HD Webcam C615), l'évolution de la hauteur d'un gel de noir de carbone de concentration 1% laissé au repos dans un tube à essai après l'avoir énergiquement mélangé à la main. Le diagramme spatio-temporel de la figure 7.3 montre très clairement la démixtion des particules de CB dans l'huile. Le niveau du CB (en noir) diminue jusqu'à une hauteur limite environ égale à la moitié de la hauteur initiale ici et laisse place à un surnageant d'huile minérale (en blanc). Cependant, les concentrations utilisées par la suite sont 4 à 10 fois supérieures et compte tenu des durées des expériences faibles devant le temps d'effondrement du gel de noir de carbone on pourra négliger ce phénomène par la suite.

## 7.2.2 Propriétés rhéologiques d'un gel de noir de carbone

Les caractéristiques rhéologiques de gels de noir de carbone de différentes concentration sont présentées sur la figure 7.4. Ces résultats, tirés de Grenard et al. [2014],

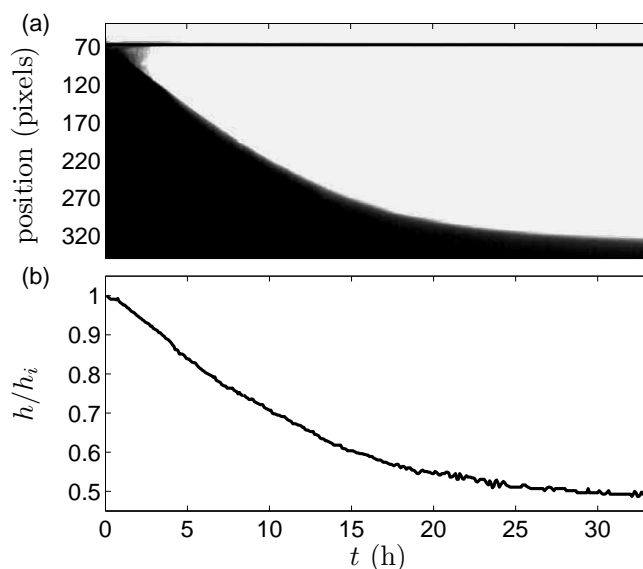


FIGURE 7.3 – **Effondrement de  $V = 40$  mL de gel de noir de carbone de concentration  $C = 1$  % placé dans un tube à essai.** (a) Diagramme spatio-temporel illustrant l'effondrement d'un gel de noir de carbone et l'apparition d'un surnageant d'huile minérale. (b) Évolution temporelle de la hauteur relative du gel par rapport à sa hauteur initiale  $h_i$ .

ont été obtenus à une température de  $25^\circ\text{C}$  avec un rhéomètre à contrainte imposée (Anton Paar MCR301) dans une cellule de Taylor-Couette d'entrefer 1 mm aux parois rugueuses (rugosité d'environ  $1 \mu\text{m}$ ). La rhéologie linéaire, obtenue à l'aide d'expériences en oscillation de faible amplitude, est illustrée sur les figures 7.4(a) et 7.4(b). La figure 7.4(a) trace les évolutions des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence d'oscillation  $f$  et montre une tendance caractéristique des solides mous, avec un module élastique  $G'$  qui reste essentiellement constant et nettement plus grand que le module visqueux  $G''$  qui lui augmente légèrement avec la fréquence. La figure 7.4(b) présente l'évolution de  $G'$  et  $G''$  avec l'amplitude de la contrainte oscillante. Cette mesure permet d'estimer une contrainte seuil  $\sigma_{y1}$  en regardant à quelle amplitude de contrainte on obtient le croisement  $G' = G''$  où le gel passe d'un état solide ( $G' > G''$ ) à un état fluide ( $G' < G''$ ). Cette contrainte seuil dépend bien évidemment de la concentration du gel. On trouve  $\sigma_{y1} = 4,8; 15,3; 32,5$  et  $80$  Pa respectivement pour des concentrations de 4, 6, 8 et 10% en masse. Comme nous le verrons un peu plus loin, cette estimation de  $\sigma_{y1}$  dépend également de la vitesse de la rampe utilisée pour faire varier l'amplitude de la contrainte oscillante.

La rhéologie non-linéaire est illustrée à partir des courbes d'écoulement  $\sigma$  en fonction de  $\dot{\gamma}$  sur la figure 7.4 de droite. Ces courbes ont été obtenues en diminuant rapidement le taux de cisaillement en partant de  $\dot{\gamma} = 10^3 \text{ s}^{-1}$  pour les mêmes échantillons (4, 6, 8 et 10%). Pour des taux de cisaillement supérieurs à  $1 \text{ s}^{-1}$ , les données peuvent être interpolées raisonnablement par une loi de Herschel-Bulkley :  $\sigma = \sigma_{y2} + A\dot{\gamma}^n$  donnant des valeurs de contraintes seuils de  $\sigma_{y2} = 5,6; 22,5; 62$  et  $146$  Pa et une valeur d'exposant  $n = 0,60; 0,49; 0,43$  et  $0,45$  respectivement pour les quatre concentrations étudiées. Ces valeurs d'exposant sont typiques et coïncident avec les valeurs de la littérature

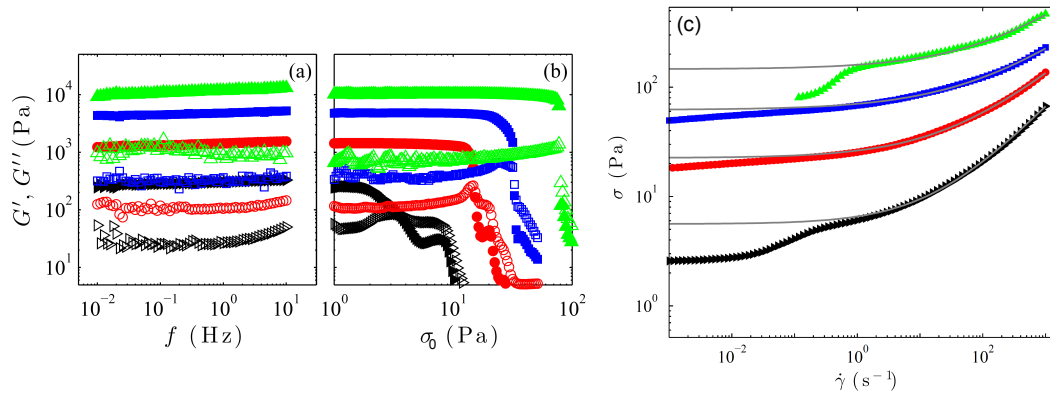


FIGURE 7.4 – **Rhéologie linéaire et non linéaire de gels de noir de carbone.** Évolution du module élastique  $G'$  (symboles pleins) et du module visqueux  $G''$  (symboles vides) pour des concentrations  $C = 4$  ( $\blacktriangleright$ ),  $6$  ( $\circ$ ),  $8$  ( $\square$ ) et  $10\%$  en masse ( $\triangle$ ) dans une cellule de Couette aux parois rugueuses lors de (a) une rampe en fréquence pour une amplitude de contrainte oscillante fixée à  $\sigma = 2$  Pa (le temps d'attente par point est de 6 périodes d'oscillation) et (b) une rampe en amplitude  $\sigma$  pour une fréquence d'oscillation fixée à  $f = 1$  Hz (5 s de temps d'attente par point). (c) Courbes d'écoulement  $\sigma$  vs  $\dot{\gamma}$  pour des concentrations  $C = 4, 6, 8$  et  $10\%$  en masse (de haut en bas) dans une cellule de Couette aux parois rugueuses. Le taux de cisaillement est appliqué selon une rampe décroissante partant de  $10^3$   $s^{-1}$  avec un espacement logarithmique de 15 points par décade et un temps d'attente de 1 s par point. Les lignes en traits pleins sont des ajustements par la loi de Herschel-Bulkley :  $\sigma = \sigma_{y2} + A\dot{\gamma}^n$ , pour  $\dot{\gamma} > 1$   $s^{-1}$ . Figures adaptées de [Grenard et al., 2014].

pour toute une variété de fluides à seuil tels que les émulsions concentrées [Salmon et al., 2003a], les mousses [Höhler et Addad, 2005; Katgert et al., 2009; Marze et al., 2008; Ovarlez et al., 2010] ou encore les microgels [Roberts et Barnes, 2001; Cloitre et al., 2003; Coussot et al., 2009; Divoux et al., 2012]. À bas taux de cisaillement on observe une déviation de la loi d'Herschel-Bulkley qui est généralement attribuée à du glissement aux parois en dépit des conditions rugueuses de la cellule utilisée ici. La contrainte seuil  $\sigma_{y2}$  estimée ici dépend encore une fois de la vitesse de la rampe en taux de cisaillement. En effet, plus la vitesse de la rampe est grande, moins le gel a le temps de se reconstituer : on obtient alors une contrainte seuil  $\sigma_{y2}$  plus faible. Comment alors estimer correctement la contrainte seuil d'un gel de noir de carbone en sachant que l'histoire du gel influe sur sa fluidification future ?

La fluidification d'un gel de noir de carbone a fait l'objet de nombreuses études antérieures. Des expériences de fluage réalisées dans notre équipe ont fait notamment l'objet d'une publication récente : [Grenard et al., 2014] que nous présenterons un peu plus en détail lors de la comparaison avec la rupture d'un gel de protéine (paragraphe 8.6). Lors d'une expérience standard de fluage où une contrainte constante est appliquée, les gels de CB présentent une fluidification dite *retardée* communément appelée « delayed yielding » en anglais. Ces gels de CB [Gibaud et al., 2010; Grenard et al., 2014], comme d'autres gels colloïdaux [Gopalakrishnan et Zukoski, 2007; Sprakel et al., 2011; Lindström et al., 2012a] se comportent comme des solides élastiques avant de se fluidifier au bout d'un temps  $\tau_f$ . Ce comportement de dépendance temporelle a été modélisé selon des processus activés prédisant une décroissance quasi-exponentielle du

temps de fluidification  $\tau_f$  avec la contrainte appliquée  $\sigma$  [Gopalakrishnan et Zukoski, 2007; Sprakel et al., 2011; Lindström et al., 2012a].

En plus de cette dépendance temporelle, Gibaud et al. [2010] ont montré à partir d'une technique d'imagerie ultrasonore uni-dimensionnelle que le processus de fluidification du CB présente du glissement aux parois ainsi qu'une fluidification spatialement hétérogène. Des expériences très récentes ont aussi montré que cette fluidification retardée est affectée par les conditions limites. En effet, l'utilisation de parois rugueuses à la place de parois lisses introduit une échelle de temps additionnelle associée à un régime de fluage initial en loi de puissance qui se termine lorsque que le gel casse à la paroi mobile et dont la durée diverge comme une loi de puissance de la contrainte de cisaillement appliquée au voisinage de la contrainte seuil [Grenard et al., 2014].

Au cours de ma thèse, nous avons étudié le comportement de ces gels de noir de carbone soumis à une contrainte de cisaillement oscillante de grande amplitude, dite « LAOS-Stress » en anglais. En combinant l'analyse des données rhéologiques et la technique bi-dimensionnelle d'imagerie ultrasonore, nous avons pu mieux comprendre le scénario de fluidification en LAOS-Stress décrit brièvement dans [Gibaud et al., 2010].

## 7.3 Matériel et méthodes pour une étude en LAOS-Stress

### 7.3.1 Protocole utilisé

Les mesures rhéologiques ont été réalisées dans une cellule de Couette aux parois lisses de hauteur 50 mm avec un cylindre intérieur tournant (rotor) de rayon 48 mm fait en PEEK et d'un cylindre extérieur fixe (stator) de rayon 50 mm fait de PMMA. Le rotor a été choisi creux de manière à réduire son inertie. Cette cellule de Couette est montée sur un rhéomètre à contrainte imposée (ARG2, TA Instruments). Pour assurer un état initial du gel reproductible, chaque mesure est précédée premièrement de deux pré-cisaillements à  $+500 \text{ s}^{-1}$  et  $-500 \text{ s}^{-1}$  durant 20 s chacun dans le but de casser les gros agrégats. Deuxièmement, on applique un taux de cisaillement nul pendant 2 s, de manière à arrêter l'écoulement instantanément, et une contrainte de cisaillement nulle pendant 10 s pour éliminer les contraintes résiduelles qui persistent dans l'échantillon [Osuji et al., 2008]. Troisièmement, on enregistre les propriétés linéaires viscoélastiques du gel en mesurant le module élastique  $G'$  et le module de perte  $G''$  grâce à un cisaillement sinusoïdal de faible amplitude 0,5 Pa et de fréquence  $f_0 = 1 \text{ Hz}$  pendant 60 s. L'état stationnaire est atteint au bout de quelques secondes et on trouve les valeurs typiques :  $G' \simeq 1,5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$  et  $G'' \simeq 150 \text{ Pa}$ . L'échantillon est ensuite laissé au repos pendant 10 s en appliquant une contrainte de cisaillement nulle. Finalement, on démarre l'expérience en imposant des oscillations sinusoïdales d'amplitude  $\sigma_0$  et de fréquence  $f_0$  au cours du temps :

$$\sigma = \sigma_0 \cos(\omega_0 t) \quad (7.1)$$

avec  $\omega_0 = 2\pi f_0$ . La température est contrôlée par une circulation d'eau autour de la cellule de Couette et fixée à  $25 \pm 0.1^\circ\text{C}$ . Toute l'analyse des données rhéologiques sera présentée au paragraphe 7.4.2 pour une fréquence  $f_0 = 1 \text{ Hz}$  et une amplitude de contrainte  $\sigma_0 = 11 \text{ Pa}$  et pour une concentration du gel  $C = 6\%$ . Nous nous



intéresserons dans un deuxième temps à l'effet de l'amplitude, de la fréquence et de la concentration.

### 7.3.2 Problèmes potentiels rencontrés en LAOS-Stress

Il est important de garder à l'esprit qu'avec un matériau dont les propriétés mécaniques évoluent au cours du temps, des problèmes expérimentaux peuvent survenir lorsque l'on réalise des expériences de LAOS-Stress et ceci même en utilisant un rhéomètre à contrainte imposée [Laüger et Stettin, 2010]. En effet le rhéomètre utilise une boucle de rétroaction prenant en compte l'inertie de l'instrument et du rotor pour s'assurer que la contrainte appliquée sur l'échantillon reste sinusoïdale avec l'amplitude demandée. Quand la structure du matériau évolue significativement sur un petit nombre d'oscillations successives, la rétroaction peut être insuffisante pour que l'amplitude de la contrainte corresponde à la valeur demandée et pour que les oscillations restent sinusoïdales, surtout à grande amplitude et/ou à faible fréquence. Le principal problème que l'on rencontre est le suivant. Lorsque l'échantillon se fluidifie, la contrainte due à l'inertie (dite « contrainte inertielle ») augmente brusquement pendant que le rhéomètre garde la même contrainte totale (dite « contrainte brute ») ce qui par conséquent induit une diminution de la contrainte ressentie par l'échantillon (dite « contrainte appliquée à l'échantillon ») en dessous de la valeur demandée. Cependant, les rhéomètres les plus récents (dont l'ARG2 utilisé dans cette étude) utilisent une procédure de « direct strain oscillation » (DSO) pour corriger l'inertie en temps réel à chaque cycle d'oscillation, ce qui minimise les déviations du signal de contrainte sinusoïdale exigé [Laüger et Stettin, 2010]. Autre problème, notre rhéomètre utilise un contrôle de position supplémentaire superposé au contrôle de contrainte pour éviter des dérives de la position moyenne du zéro. Ceci correspond à une correction du couple (« torque soft lock » en anglais) qui réduit le couple atteint. Cette réduction de couple est d'habitude négligeable pour des échantillons de forte rigidité mais peut affecter significativement le signal de contrainte si la rigidité de l'échantillon décroît à cause de sa fluidification progressive.

Plus généralement, l'inertie peut sérieusement compliquer l'analyse des données en LAOS-Stress [Dimitriou, 2013] que ce soit pour des matériaux non thixotropes ou pour des matériaux dont les propriétés mécaniques évoluent au cours du temps. En particulier, dans sa configuration standard, le logiciel du rhéomètre donne accès uniquement aux formes d'onde du signal de contrainte totale. En d'autres termes, dans l'analyse résolue en temps de la déformation et des données de contrainte présentées plus loin, le signal de contrainte  $\sigma(t) = \sigma_{total}(t)$  contient à la fois la contrainte de l'échantillon  $\sigma_{sample}(t)$  et une contribution due à l'inertie de la géométrie et de l'instrument  $\sigma_{inertia}$ . En supposant que la réponse de la déformation est sinusoïdale avec une amplitude  $\gamma_0$ , l'amplitude de la contrainte inertielle oscillante est, dans l'approximation des petits entrefers, la suivante :

$$\sigma_{inertia,0} = \frac{d}{2\pi H R_1^3} \omega_0^2 I \gamma_0, \quad (7.2)$$

où  $d = 2$  mm est la taille de l'entrefer,  $R_1 = 48$  mm est le rayon du rotor,  $H = 50$  mm est la hauteur de la cellule,  $\omega_0 = 2\pi f_0$  et  $I$  est le moment d'inertie total effectif comprenant celle de l'instrument et celle de la géométrie [voir aussi la discussion dans l'annexe B de Dimitriou [2013] pour le cas d'une géométrie cône-plan]. Pour une amplitude de

contrainte  $\sigma_0$ , la contribution de l'inertie peut être négligée tant que :

$$\gamma_0 \ll \frac{2\pi H R_1^3}{d\omega_0^2 I} \sigma_0, \quad (7.3)$$

Dans ces expériences, l'inertie totale est  $I = 301 \mu\text{Nms}^{-2}$ , et la principale contribution provient du rotor ( $I_{rotor} = 282 \mu\text{Nms}^{-2}$ ). Dans le cas où  $f_0 = 1 \text{ Hz}$  et  $\sigma_0 = 11 \text{ Pa}$ , la condition ci-dessus donne :  $\gamma_0 \ll \gamma_0^* \simeq 16$ . Bien que cette valeur ne soit qu'une estimation (car elle suppose la déformation sinusoïdale avec une amplitude inférieure à  $\gamma_0^*$ ), on peut considérer l'inertie comme négligeable et identifier la contrainte totale à la contrainte de l'échantillon tant que  $\gamma_0 \lesssim 1$ . Comme nous le montrerons plus loin au paragraphe 7.4.2, ceci reste vrai pour la plus grande partie de l'expérience, où la fluidification reste limitée spatialement. Nous avons également vérifié que le signal de contrainte reste sinusoïdal et que son amplitude correspond à la valeur exigée à 5% près sur toute la durée de l'expérience. Finalement, connaissant la forme du signal de déformation  $\gamma(t)$ , la contrainte de l'échantillon peut en principe être calculée à partir de la contrainte totale en dérivant deux fois  $\gamma(t)$  et en utilisant la relation suivante :

$$\sigma_{\text{sample}}(t) = \sigma_{\text{total}}(t) - \sigma_{\text{inertia}}(t) = \sigma_{\text{total}}(t) - \frac{d}{2\pi H R_1^3} I \ddot{\gamma}(t). \quad (7.4)$$

Dans cette étude, nous avons choisi de garder la mesure de  $\sigma_{\text{total}}(t)$  du rhéomètre pour les raisons suivantes :

- (i) prendre la dérivée seconde de  $\gamma(t)$  engendre un bruit expérimental important,
- (ii) les mesures en LAOS-Stress sont calculées à partir de  $\gamma(t)$  et sont insensibles à la correction de l'équation (7.4),
- (iii) plus important encore, nous montrerons à travers les mesures locales que le champ de déplacement devient spatialement hétérogène lors du processus de fluidification et que par conséquent la contribution de l'inertie augmente. Lors de ces événements hétérogènes spatialement, le processus de LAOS-Stress devient clairement discutable et les mesures correspondantes sont difficilement interprétables.

### 7.3.3 Analyse des données de LAOS-Stress

#### Introduction

Au cours des vingt dernières années, les mesures rhéologiques en cisaillement oscillant dans le régime non-linéaire ont fait d'énormes progrès grâce au développement de nouveaux outils en transformée de Fourier [Wilhelm, 2002], et à d'autres outils mathématiques [Cho, 2005; Klein et al., 2007; Ewoldt et al., 2008]. La rhéologie par transformée de Fourier nous permet d'aller au-delà de la mesure de la réponse du matériau à la fréquence fondamentale d'oscillation  $f_0$  (caractérisée par les modules de stockage  $G'$  et de perte  $G''$  étendus au régime non-linéaire et notés généralement  $G'_1$  et  $G''_1$ ). Elle passe par l'analyse d'harmoniques supérieures des signaux de contraintes et de déformations [Wilhelm, 2002]. Cependant, jusqu'à présent, aucune interprétation physique claire n'a été donnée des coefficients de Fourier de ces signaux. Pour palier à cet inconvénient de la rhéologie par transformée de Fourier, diverses approches basées sur des

décompositions différentes du signal non-linéaire ont été proposées. Elles fournissent alors des informations physiques utiles sur le comportement du matériau au cours d'un cycle d'oscillation [Cho, 2005; Klein et al., 2007; Ewoldt et al., 2008]. Parmi eux, la décomposition en polynômes de Chebyshev proposée par Ewoldt et al. [2008] présente les avantages suivants. Elle est unique, elle est directement reliée aux coefficients de Fourier et elle fournit des mesures avec une interprétation physique simple en termes de renforcement (« strain-hardening »), ramollissement (« strain-softening »), etc. Pour plus de détails, Hyun et al. [2011] ont publié récemment une revue sur le *cisaillement oscillant de grande amplitude* (LAOS pour Large Amplitude Oscillatory Shear en anglais). Cette technique est également nommée « LAOS-Strain » ou « LAOS-Stress » pour différencier les oscillations à déformation imposée des oscillations à contrainte imposée [Laüger et Stettin, 2010; Dimitriou, 2013]. Compte tenu de l'importance du LAOS pour les applications pratiques comme pour les problèmes fondamentaux, il n'est pas surprenant que cette technique ait généré une quantité sans cesse croissante de publications depuis le début des années 1990. Cependant, seulement une poignée de papiers s'intéresse à la dépendance en temps des mesures en LAOS. Par exemple, le moteur de recherche Web of Knowledge propose environ 290 et 200 résultats depuis 1990 pour des recherches basées sur les mots-clés « large amplitude oscillatory shear » (cisaillement oscillant de grande amplitude) et « Fourier-transform rheology » (rhéologie par transformée de Fourier) respectivement. Cependant, on trouve moins de cinq résultats lorsque l'un ou l'autre de ces mots-clés est associé à « time dependence » (dépendance temporelle) ou à « thixotropy » (thixotropie). Hormis les travaux de Li et al. [2009] sur des polymères, de Rogers et al. [2011] sur le vieillissement de polymères vitreux en étoiles et de [Dimitriou, 2013] sur un mélange d'huile et de paraffine, il semble que la grande majorité des travaux portant sur des expériences en LAOS considère comme acquis que les oscillations sont effectuées dans un « état stationnaire », c'est-à-dire que les propriétés du matériau ne changent pas de manière significative d'une d'oscillation à l'autre. Pour cela, il faut que les échelles de temps caractéristiques des modifications de la microstructure restent beaucoup plus faibles que  $1/f_0$  et que toutes les autres échelles de temps impliquées dans le protocole en LAOS. Malheureusement, sous l'effet d'oscillations de grandes amplitudes, de nombreux matériaux mous présentent des dynamiques lentes. Si la microstructure du matériau évolue sur des échelles de temps plus longues que celles du protocole en LAOS, ces dynamiques peuvent compliquer l'analyse des résultats en LAOS et même remettre en question la validité de leur interprétation. L'objectif de ce paragraphe est donc de mettre en évidence l'influence de l'évolution temporelle de la microstructure sur les mesures rhéologiques enregistrées au cours d'expériences en LAOS pour un système colloïdal attractif : le gel de noir de carbone.

### Rhéologie par transformée de Fourier

En plus des mesures habituelles à la fréquence fondamentale d'oscillation qui sont fournies directement par le rhéomètre à savoir  $G' = G'_1$ ,  $G'' = G''_1$  et le déphasage  $\delta = \delta_1$  entre le signal de contrainte en entrée et le signal de réponse en déformation en sortie à  $\omega_0$ , nous utilisons des outils de transformée de Fourier pour calculer le spectre de Fourier complexe  $J^*(\omega)$  de la réponse en déformation  $\gamma(t)$  et ses composantes  $J_n^* = J^*(n\omega_0)$ ,

dont les parties réelles et imaginaires sont notées respectivement  $J'_n$  et  $J''_n$ , avec  $n \in \mathbb{N}$ .

$$J_n^* = J^*(n\omega_0) = J'_n + iJ''_n. \quad (7.5)$$

Comme nous le vérifierons plus loin (Fig.7.7), les harmoniques impaires dominent largement dans la transformée de Fourier de la réponse en déformation. Par conséquent, conformément à ce qu'il a été décrit dans [Dimitriou, 2013] et en utilisant la normalisation adéquate pour les coefficients de Fourier,  $\gamma(t)$  peut s'écrire :

$$\gamma(t) = \sigma_0 \operatorname{Re} \left\{ \sum_{n \text{ impair}} J^*(n\omega_0) \exp(-in\omega_0 t) \right\}, \quad (7.6)$$

soit

$$\gamma(t) = \sigma_0 \sum_{n \text{ impair}} \{J'_n \cos(n\omega_0 t) + J''_n \sin(n\omega_0 t)\}, \quad (7.7)$$

où  $\sigma(t) = \sigma_0 \cos(\omega_0 t)$  est la contrainte imposée par le rhéomètre.

Dans le but de quantifier les non-linéarités, on définit le taux de distorsion harmonique (noté THD pour « Total Harmonic Distorsion » en anglais) du signal de déformation par :

$$\operatorname{THD}(\gamma) = \frac{\sqrt{\sum_{n \text{ impair} \geq 3} |J_n^*|^2}}{|J_1^*|}. \quad (7.8)$$

Pour tester la présence d'harmoniques dans le signal de contrainte imposée par le rhéomètre, nous définissons de manière similaire un taux de distorsion harmonique  $\operatorname{THD}(\sigma)$  basé sur la transformée de Fourier de  $\sigma(t)$  (voir Fig.7.8). Enfin, puisque nous nous intéressons à l'évolution temporelle de l'échantillon, la transformée de Fourier est calculée successivement sur les formes d'onde enregistrées sur une période par le rhéomètre pour de longues expériences où l'amplitude de l'oscillation et la fréquence restent constantes. Comme attendu pour un matériau dépendant du temps, les coefficients de Fourier dépendront eux-mêmes du temps. Par conséquent, ils devraient être notés en principe  $J'_n(t_0)$  et  $J''_n(t_0)$ , où  $t_0$  est le temps auquel la transformée de Fourier a été calculée. Cependant, dans la suite, nous utiliserons le même symbole  $t$  pour noter le temps au cours d'une oscillation et sur toute l'expérience. Cette remarque vaut aussi pour le taux de distorsion harmonique (THD).

### Mesures de LAOS-Stress

Dans ce paragraphe, nous rappelons brièvement les définitions des différentes mesures en LAOS-Stress basées sur les données rhéologiques ainsi que leurs interprétations comme l'ont décrit Laüger et Stettin [2010] et Dimitriou [2013]. Dans un premier temps, à partir des coefficients de complaisance (« compliance » en anglais)  $J'_n$ , on peut introduire deux types de mesures élastiques : (i) la complaisance élastique à contrainte nulle,  $J'_M$  est définie par :

$$J'_M \equiv \left. \frac{d\gamma}{d\sigma} \right|_{\sigma=0} = \sum_{n \text{ impair}} (-1)^{(n-1)/2} n J'_n = J'_1 - 3J'_3 + 5J'_5 - 7J'_7 + \dots, \quad (7.9)$$

et (ii) la complaisance élastique à grande contrainte,  $J'_L$  est définie comme :

$$J'_L \equiv \left. \frac{\gamma}{\sigma} \right|_{\sigma=\sigma_0} = \sum_{n \text{ impair}} J'_n = J'_1 + J'_3 + J'_5 + J'_7 + \dots \quad (7.10)$$

Ces deux complaisances peuvent être interprétées géométriquement en considérant la courbe de Lissajous de la réponse en déformation  $\gamma(t)$  en fonction de la contrainte de cisaillement imposée par le rhéomètre  $\sigma(t)$  :  $J'_M$  et  $J'_L$  correspondent respectivement à la pente de la tangente à la courbe de Lissajous en  $\sigma = 0$  et à la pente de la ligne joignant les deux extrémités du cycle à  $\sigma = \pm\sigma_0$ . Nous illustrerons ceci sur les figures 7.9(a,c,e) présentées un peu plus loin. De manière similaire, on introduit deux coefficients de fluidité basés sur la réponse en taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  : (i) la fluidité à contrainte nulle  $\phi'_M$  définie par :

$$\phi'_M \equiv \left. \frac{d\dot{\gamma}}{d\sigma} \right|_{\sigma=0} = \sum_{n \text{ impair}} (-1)^{(n-1)/2} n^2 \omega_0 J''_n = \omega_0 (J''_1 - 9J''_3 + 25J''_5 - 49J''_7 + \dots), \quad (7.11)$$

et (ii) la fluidité à grande contrainte  $\phi'_L$  définie par :

$$\phi'_L \equiv \left. \frac{\dot{\gamma}}{\sigma} \right|_{\sigma=\sigma_0} = \sum_{n \text{ impair}} n \omega_0 J''_n = \omega_0 (J''_1 + 3J''_3 + 5J''_5 + 7J''_7 + \dots). \quad (7.12)$$

Les équations (7.11) et (7.12) correspondent aux équations (7.9) et (7.10) où le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est utilisé à la place de la déformation  $\gamma$  et les coefficients de fluidité  $n\omega_0 J''_n$  remplacent ceux de complaisance  $J'_n$ . Par conséquent,  $\phi'_M$  et  $\phi'_L$  ont des interprétations géométriques similaires mais en considérant les courbes de Lissajous de  $\dot{\gamma}(t)$  vs  $\sigma(t)$ . Nous illustrerons ceci sur les figures 7.9(b,d,f). Ainsi,  $J'_M$  et  $\phi'_M$  caractérisent le comportement non-linéaire à contrainte nulle  $\sigma = 0$ , tandis que  $J'_L$  et  $\phi'_L$  quantifient la non-linéarité à contrainte maximale  $\sigma = \pm\sigma_0$ . En vue de bien comprendre le comportement élastique au sein d'un cycle à travers une seule mesure, Dimitriou [2013] a proposé de considérer le rapport relatif  $R$  du changement de complaisance au sein d'une oscillation :

$$R \equiv \frac{J'_L - J'_M}{J'_L} = \frac{4J'_3 - 4J'_5 + 8J'_7 - 8J'_9 + \dots}{J'_1 + J'_3 + J'_5 + \dots}. \quad (7.13)$$

Une valeur positive de  $R$  correspond à un « *ramollissement* » (« stress-softening » en anglais) au cours d'un cycle tandis qu'une valeur négative indique un « *renforcement* » (« stress-stiffening » en anglais). Par conséquent,  $R$  correspond à un indice de stress-softening. Un rapport similaire  $Q$  peut être décrit pour les coefficients de fluidité. Il correspond à un indice de « *fluidification* » (« stress-thinning » en anglais) et est défini comme le changement de fluidité au sein d'une oscillation par la relation suivante :

$$Q \equiv \frac{\phi'_L - \phi'_M}{\phi'_L} \simeq \frac{12J''_3 - 20J''_5 + 56J''_7 - 72J''_9 + \dots}{J''_1 + 3J''_3 + 5J''_5 + \dots}. \quad (7.14)$$

Une valeur positive de  $Q$  correspond à un comportement « *fluidifiant* » (« stress-thinning » en anglais) au sein d'un cycle, tandis qu'une valeur négative de  $Q$  indique un comportement « *épaississant* » (« stress-thickening » en anglais). En résumé :

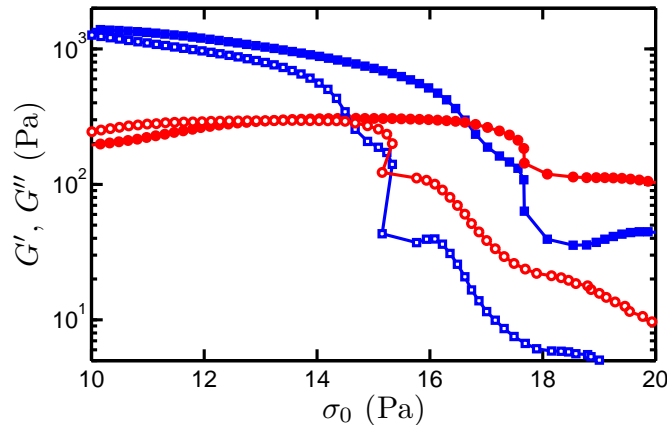


FIGURE 7.5 – Expérience de rampe en amplitude  $\sigma_0$  de la contrainte oscillante illustrant la fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  à une fréquence  $f_0 = 1$  Hz. Le module élastique  $G'$  (carrés bleus) et le module de perte  $G''$  (ronds rouges) sont tracés en fonction de l'amplitude de la contrainte oscillante  $\sigma_0$  pour deux vitesses de rampe :  $34 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$  (symboles pleins) et  $7 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$  (symboles vides).

$$\begin{array}{ll}
 R > 0 : \text{stress-softening} & R < 0 : \text{stress-stiffening} \\
 Q > 0 : \text{stress-thinning} & Q < 0 : \text{stress-thickening}
 \end{array}$$

Comme nous l'avons déjà mentionné plus haut pour les coefficients de Fourier et pour le THD, dans un gel colloïdal dépendant du temps, on s'attend à ce que toutes les mesures de LAOS-Stress introduites dans cette partie varient au cours du temps. Ces quantités vont par conséquent nous permettre de quantifier l'évolution des propriétés des gels de noir de carbone au cours du temps.

## 7.4 Fluidification d'un gel de noir de carbone en LAOS-Stress

### 7.4.1 Rampe en contrainte de cisaillement

Les premiers résultats expérimentaux sont illustrés sur la figure 7.5 et concernent une procédure standard d'oscillation où l'amplitude de la contrainte imposée augmente linéairement au cours du temps. Pour ce faire, on applique une rampe en amplitude  $\sigma_0$  de la contrainte oscillante qui démarre dans le régime linéaire où les déformations sont faibles et augmente jusqu'à un état totalement non-linéaire pour une fréquence d'oscillation fixée  $f_0 = 1$  Hz. Les modules viscoélastiques  $G'$  (carrés bleus) et  $G''$  (ronds rouges) sont enregistrés par le rhéomètre en fonction de l'amplitude  $\sigma_0$  de la contrainte appliquée à l'échantillon. Les symboles pleins représentent ces coefficients pour une vitesse de rampe « rapide » de  $34 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ . Initialement, le gel présente un comportement solide avec  $G' \gg G''$ . Puis il semble se fluidifier ( $G' \simeq G''$ ) quand  $\sigma_0$  atteint une valeur caractéristique  $\sigma_{y1} \simeq 16,6$  Pa. Pour de plus grandes valeurs de la contrainte  $\sigma_0$ , les deux modules présentent un épaulement marqué avant d'atteindre un état totalement fluide où  $G' \ll G''$ .

De manière assez surprenante, si on utilise une vitesse de rampe plus faible, de l'ordre de  $7 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $G'$  et  $G''$  (symboles vides) montrent une dépendance similaire mais plus marquée en contrainte et se croisent à  $\sigma_y 1 \simeq 14,6 \text{ Pa}$ . Par conséquent, la réponse du matériau à une rampe montante en amplitude de contrainte oscillante dépend significativement de la vitesse de la rampe. Une telle dépendance est souvent décrite dans la littérature pour des matériaux thixotropes qui présentent des cycles d'hystérésis dans les mesures de courbes d'écoulement [Mewis et Wagner, 2009; Divoux et al., 2013]. On peut montrer grâce à des mesures systématiques que cette contrainte seuil apparente  $\sigma_y$  diminue lorsque la vitesse de la rampe diminue. Ce comportement s'apparente à un processus de fatigue sous cisaillement oscillant. Par conséquent, l'évolution des modules viscoélastiques montrée sur la figure 7.5, en particulier les différentes augmentations et baisses de  $G'$  et  $G''$  ne peuvent être interprétées comme des états stationnaires. Par conséquent ces mesures rhéologiques ne suffisent pas et demandent une imagerie résolue temporellement et spatialement de la dynamique d'écoulement du CB sous contrainte oscillante.

Pour finir, nous soulignons que les points sur la figure 7.5 ne sont pas régulièrement espacés en  $\sigma_0$  malgré le fait qu'on impose une rampe linéaire. Pour la rampe la plus lente, l'amplitude de la contrainte décroît même pour  $\sigma_0 \simeq 15 \text{ Pa}$ . Ce problème illustre bien les difficultés qu'a le rhéomètre à imposer la valeur de la contrainte demandée pour un matériau dépendant fortement du temps.

## 7.4.2 Expérience en contrainte oscillante d'amplitude constante

Dans tout ce paragraphe, nous nous focaliserons principalement sur une expérience de LAOS-Stress réalisée à une contrainte d'amplitude constante  $\sigma_0 = 11 \text{ Pa}$  et à une fréquence d'oscillation fixée  $f_0 = 1 \text{ Hz}$  sur plus de  $4.10^4 \text{ s}$ . Cette expérience a été réalisée à une amplitude suffisamment faible pour que les différentes étapes de la fluidification puissent être facilement discernables. Nous allons dans un premier temps discuter les mesures rhéologiques standard acquises par le rhéomètre et puis dans un second temps nous tourner vers la rhéologie par transformée de Fourier et l'analyse des mesures LAOS-Stress décrites ci-dessus.

### Mesures rhéologiques standard

La figure 7.6(a) montre l'évolution temporelle des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  avec en insert des exemples de signaux de contrainte et de déformation sur un cycle pris à trois étapes différentes de l'expérience. Les figures 7.6(b) et 7.6(c) montrent respectivement le déphasage  $\delta$  entre la réponse en déformation et la contrainte appliquée par le rhéomètre, et l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$  enregistrée par le rhéomètre en fonction du temps. Ici, le déphasage est calculé à partir de la contrainte appliquée à l'échantillon tandis que les signaux de contrainte de la figure 7.6(a) sont des signaux bruts. Les données rhéologiques standard révèlent clairement une forte dépendance temporelle des propriétés du gel colloïdal. Bien que  $\sigma_0$  se situe en-deçà de la contrainte critique apparente  $\sigma_y$  mesurée à partir des expériences de rampe de la figure 7.5, le gel de noir de carbone passe progressivement d'un état de solide élastique vers un état de liquide visqueux si on lui laisse suffisamment de temps pour le faire. En effet, on a

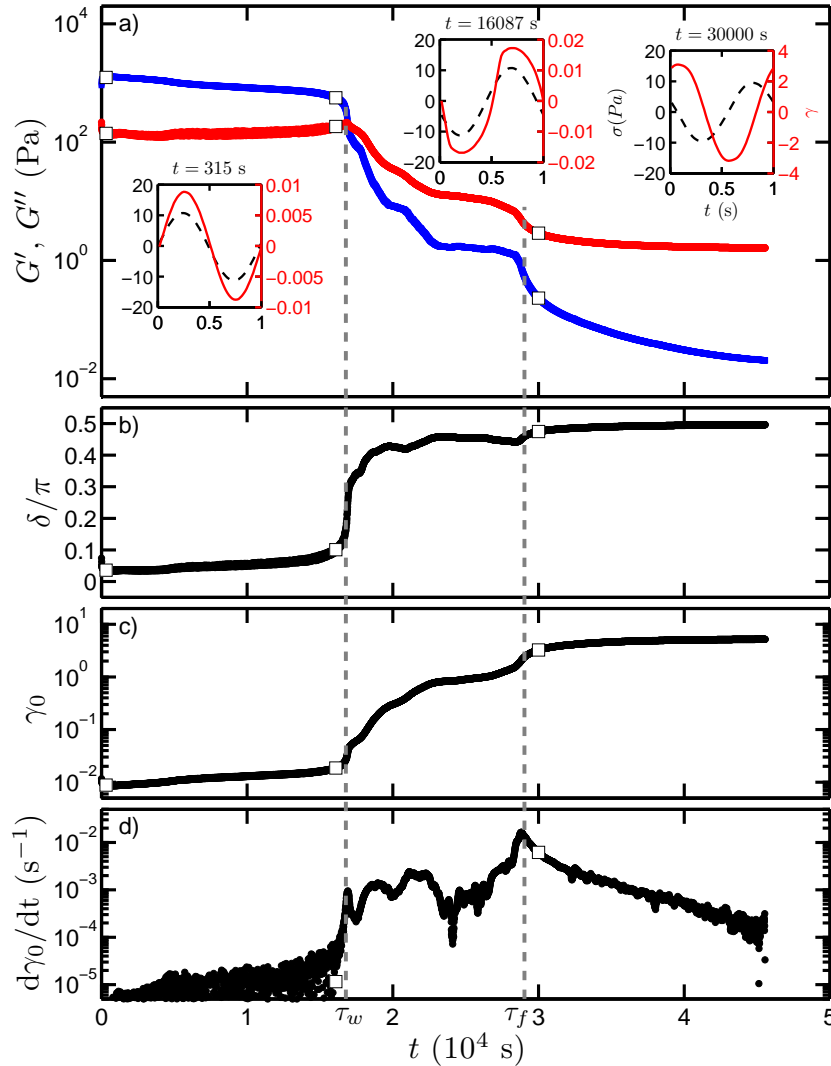


FIGURE 7.6 – Expérience de LAOS-Stress résolue en temps illustrant la fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  pour une amplitude constante de contrainte oscillante  $\sigma_0 = 11 \text{ Pa}$  et une fréquence  $f_0 = 1 \text{ Hz}$ . (a) Évolution temporelle du module élastique  $G'$  (bleu) et du module de perte  $G''$  (rouge). Initialement, le gel se comporte comme un solide ( $G' \gg G''$ ). Il semble céder ( $G' \simeq G''$ ) à  $t \simeq 1.6 \cdot 10^4 \text{ s}$  et s'écouler par la suite comme un liquide ( $G' \ll G''$ ). Insert : réponse instantanée en déformation  $\gamma(t)$  (ligne rouge en trait plein) et signal de contrainte sinusoïdal imposé  $\sigma(t)$  (ligne noire en pointillés) sur une période d'oscillation, à trois temps différents indiqués au dessus de chaque figure et par les symboles carrés sur les graphes principaux. (b) Évolution temporelle du déphasage  $\delta = \tan^{-1}(G''/G')$  entre  $\sigma(t)$  et  $\gamma(t)$ . (c) Évolution temporelle de l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$ . (d) Évolution temporelle de la dérivée temporelle  $d\gamma_0/dt(t)$  de l'amplitude de la réponse en déformation montrée en (c). Les lignes grises en pointillés indiquent les deux temps caractéristiques discutés dans le texte : le temps  $\tau_w$  tel que  $G'(\tau_w) = G''(\tau_w)$ , qui définit la « fluidification apparente » du gel, et le temps  $\tau_f$  pour lequel  $d\gamma_0/dt(t)$  passe par un maximum et qui correspond à la fluidification complète comme le confirmera l'imagerie ultrasonore au paragraphe 7.4.3.



$G' \gg G''$  et  $\delta \simeq 0$  pour  $t \lesssim 1,5 \cdot 10^4$  s tandis que  $G' \ll G''$  et  $\delta \simeq \pi/2$  pour  $t \gtrsim 3 \cdot 10^4$  s (voir aussi les signaux sinusoïdaux à  $t = 315$  et  $3 \cdot 10^4$  s qui sont respectivement en phase et en quadrature de phase). Dans cet intervalle de temps, l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$  gagne plus de deux ordres de grandeur et passe de 0,01 à environ 5.

À partir de l'évolution lente de l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$  [Fig.7.6(c)], on peut calculer la dérivée temporelle  $d\gamma_0/dt$  (à ne pas confondre avec l'amplitude du taux de cisaillement oscillant  $\dot{\gamma}_0 = \omega_0 \gamma_0$ ). L'évolution temporelle de  $d\gamma_0/dt$  sur toute l'expérience est tracée sur la figure 7.6(d). Après un temps assez long pendant lequel les valeurs sont très faibles,  $d\gamma_0/dt$  passe par un premier maximum local, qui correspond au point où  $G'$  et  $G''$  coïncident (et où de plus  $\delta = \pi/4$ ). Ceci définit un premier temps caractéristique  $\tau_w$  associé au processus de fluidification d'un gel de noir de carbone sous LAOS-Stress et qui correspond à ce que nous appellerons : « fluidification apparente ». Dans ce cas, on a  $\tau_w = 16910 \pm 10$  s et  $\gamma_0 \simeq 0,04$  à  $\tau_w$ . À partir de ce moment, la réponse en déformation devient fortement non-linéaire comme nous pouvons le vérifier sur le signal à  $t = 16087$  s dans l'insert du milieu de la figure 7.6(a). En outre, un second temps caractéristique  $\tau_f$  peut être déduit de la figure 7.6(d), qui correspond au maximum global atteint par  $d\gamma_0/dt$ , ici pour  $\tau_f = 28950 \pm 50$  s. Entre  $\tau_w$  et  $\tau_f$ , la réponse rhéologique du matériau apparaît très complexe comme nous le verrons avec l'étude rhéologique par transformée de Fourier, et du fait que  $G'' > G'$ , l'échantillon apparaît comme fluide. On observe alors que les deux modules viscoélastiques décroissent rapidement tandis que  $\gamma_0$  augmente fortement. Les fluctuations du signal de  $d\gamma_0/dt$  montrent le côté chaotique de cette transition. Quand  $\tau_f$  est atteint,  $\gamma_0 \simeq 2,3$  et toutes les données rhéologiques  $G'$ ,  $G''$ ,  $\delta$ , et  $\gamma_0$  relaxent progressivement vers leurs valeurs finales et stationnaires.

En résumé, l'évolution temporelle du gel est caractérisée par deux échelles de temps :  $\tau_w$  et  $\tau_f$ , qui rappelle les expériences en rampe de LAOS-Strain dans des verres attractifs réalisées par Pham et al. [2006]; Laurati et al. [2011]. Ceux-ci ont défini deux processus de fluidification successifs en fonction de l'amplitude de la déformation appliquée : un premier à  $\gamma_1 = 0,01-0,05$  interprété comme l'étirement des liens entre les colloïdes et un second à  $\gamma_2 = 1-3$  interprété comme la dislocation des cages effectives formées par les colloïdes voisins. Bien que l'ordre de grandeur des amplitudes de  $\gamma_0(\tau_w) \simeq 0,04$  et  $\gamma_0(\tau_f) \simeq 2,3$  soit en accord avec les deux déformations caractéristiques  $\gamma_{y1}$  et  $\gamma_{y2}$  observées en LAOS-Strain, il est prématuré de pousser d'avantage l'analogie en l'absence de plus de mesures locales. Dans le but d'étudier plus en détail la réponse en LAOS-Stress de l'échantillon, nous allons nous consacrer à une analyse de la non-linéarité des données rhéologiques dans les deux paragraphes suivants.

### Étude rhéologique par transformée de Fourier

La figure 7.7(a) montre le spectre de puissance  $|J^*(\omega)|^2$  de la réponse en déformation au temps  $t = 16087$  s déjà illustrée dans l'insert du milieu de la figure 7.6(a) et retracée sur la figure 7.7(b) en trait plein noir. Ce temps a été choisi légèrement en-dessous de  $\tau_w$  car il correspond à un temps où l'amplitude des harmoniques du signal sont les plus grandes. Le spectre de puissance est normalisé par la contribution des harmoniques impaires  $\sum_n \text{impair} |J_n^*|^2$ . La largeur apparente non nulle du pic du fondamental et de la troisième harmonique résulte du choix de la fenêtre utilisée pour la

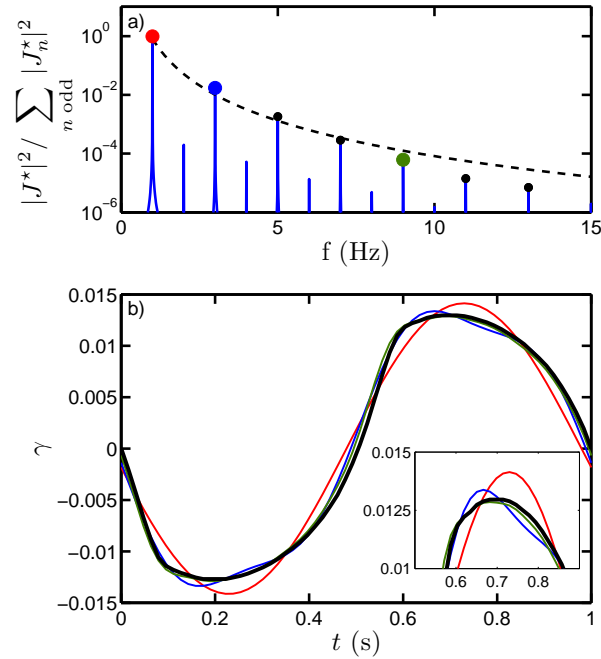


FIGURE 7.7 – Transformée de Fourier d’une expérience en LAOS-Stress montrée sur la figure 7.6 au temps  $t = 16087$  s. (a) Spectre de puissance instantané et normalisé de la réponse en déformation  $\gamma(t)$  tracée dans l’insert du milieu de la figure 7.6(a). La ligne en pointillés montre le comportement en loi de puissance  $|J^*(\omega)| \sim 1/\omega^2$ . (b) Reconstruction du signal expérimental (ligne noire épaisse) au temps  $t = 16087$  s basée sur la transformée de Fourier de la réponse en déformation  $\gamma(t)$  en prenant en compte différentes harmoniques impaires : le fondamental uniquement (rouge), le fondamental et la troisième harmonique (bleu) et jusqu’à la neuvième harmonique (vert).

transformée de Fourier. Nous pouvons vérifier sur la figure 7.7(a) que les harmoniques impaires prédominent sur les harmoniques paires dans le spectre de puissance jusqu’à l’harmonique 9. De ce fait, dans la suite, la somme sur les harmoniques impaires sera toujours restreinte à  $n = 9$ . En effet, même si la deuxième harmonique  $|J_2^*|$  est deux ordres de grandeurs plus faible que le fondamental  $|J_1^*|$  et un ordre de grandeur plus faible que la troisième harmonique  $|J_3^*|$ , les harmoniques paires deviennent comparables aux harmoniques impaires pour  $n \geq 9$ . Le fait que les harmoniques paires soient non négligeables peut être relié à un faible glissement aux parois comme nous le discuterons plus loin au paragraphe 7.4.3 [Graham, 1995]. La figure 7.7(a) montre aussi que  $|J_n^*|$  décroît en  $1/n^2$  ce qui est typique d’un signal triangulaire. Finalement, considérer uniquement les harmoniques jusqu’à  $n = 9$  permet de bien reconstruire le signal de déformation comme le montre la ligne verte de la figure 7.7(b).

Dans la figure 7.8, nous traçons le taux de distorsion harmonique de la réponse en déformation  $\text{THD}(\gamma)$  définie par l’équation (7.8) en fonction du temps sur toute la durée de l’expérience. Les trois régimes différents énoncés au paragraphe précédente apparaissent alors très clairement sur  $\text{THD}(\gamma)$ . Pour  $t < \tau_w$ , les harmoniques croissent à peu près linéairement avec le temps jusqu’à environ 15% (voir les carrés noirs pleins) : comme l’amplitude de la déformation augmente doucement, les non-linéarités se dé-

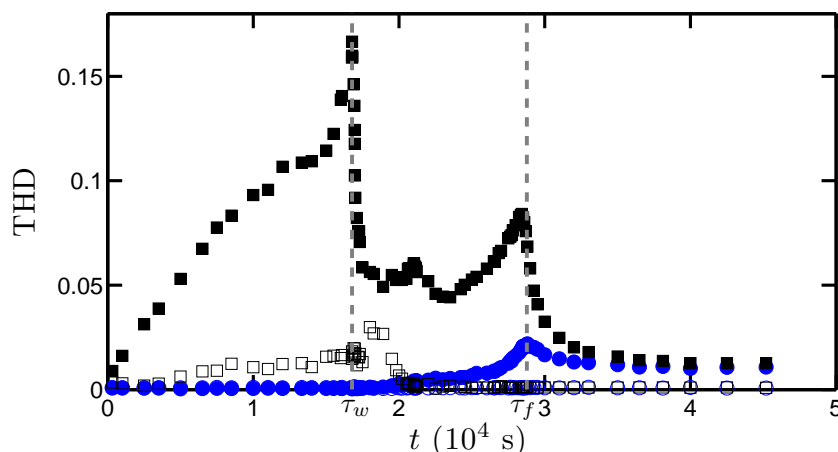


FIGURE 7.8 – Évolution temporelle de taux de distorsion harmonique  $\text{THD}(\gamma)$  de la réponse en déformation calculé grâce à l'équation (7.8) en utilisant les harmoniques impaires jusqu'à  $n = 9$  (■) et du signal de contrainte  $\text{THD}(\sigma)$  (●). Les symboles vides montrent le  $\text{THD}$  calculé en utilisant les harmoniques paires jusqu'à  $n = 8$  pour la réponse en déformation (□) et pour le signal de contrainte (○). Les lignes en pointillés gris indiquent les temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$ . Même expérience que sur la figure 7.6 :  $\sigma_0 = 11$  Pa,  $f_0 = 1$  Hz et  $C = 6\%$ .

veloppent dans le matériau initialement élastique qui quitte le régime linéaire dès le début des oscillations en LAOS-Stress. La contribution des harmoniques paires dans le spectre reste limitée (inférieure à 2%, voir les carrés vides) dans la phase initiale. Elle devient toutefois mesurable dès que  $t \gtrsim 5 \cdot 10^3$  s, ce qui sera attribué un peu plus loin à un glissement aux parois [Graham, 1995]. La mise en écoulement apparente à  $\tau_w$  coïncide avec un fort pic dans  $\text{THD}(\gamma)$ , qui décroît très rapidement jusqu'à une valeur de 5% pour  $t \gtrsim \tau_w$ . Comme nous l'avons déjà mentionné plus haut, les temps intermédiaires  $\tau_w < t < \tau_f$  sont caractérisés par des fluctuations complexes. Notons aussi que les harmoniques paires deviennent comparables aux harmoniques impaires pour  $\tau_w < t \lesssim 2 \cdot 10^4$  s, ce qui est lié à un important glissement aux parois [Graham, 1995] comme nous le confirmerons plus loin par les mesures d'imagerie ultrasonore. Finalement,  $\text{THD}(\gamma)$ , passe par un dernier maximum bien défini qui correspond au temps  $\tau_f$ . Interpréter ce maximum est cependant délicat puisqu'à ce stade du processus de fluidification, le signal de contrainte totale inclut une contribution significative de l'inertie. En effet, l'amplitude de la déformation dépasse la limite estimée à  $\gamma_0 \simeq 1$  obtenu au paragraphe 7.4.2 pour  $t \gtrsim 2,5 \cdot 10^4$  s. Ceci correspond au point où  $\text{THD}(\sigma)$  calculé sur les harmoniques impaires (voir les ronds bleus pleins de la figure 7.8) commence à augmenter significativement et passe par un maximum à  $\tau_f$ . Notons aussi que les harmoniques impaires de  $\sigma(t)$  (ronds bleus vides) restent complètement négligeables sur toute la durée de l'expérience tandis que celles de  $\gamma(t)$  (carrés noirs vides) restent complètement négligeables pour  $t \gtrsim 2 \cdot 10^4$  s. Nous avons aussi observé que dans ce régime final, l'amplitude du signal de contrainte diminue en dessous de la valeur de commande jusqu'à atteindre environ 9 Pa au lieu des 11 Pa demandés, ce qui équivaut à une erreur de 20% environ. Notons que ce pourcentage est d'autant plus faible que la valeur de la contrainte demandée est grande. Quoi qu'il en soit, comme de manière asymptotique nous obtenons  $\text{THD}(\gamma) \simeq \text{THD}(\sigma)$ , ceci montre que l'état stationnaire

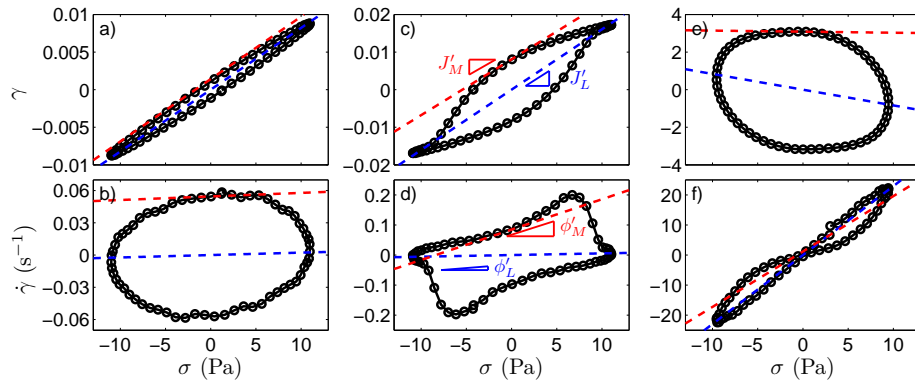


FIGURE 7.9 – Courbes de Lissajous instantanées  $[\sigma(t), \gamma(t)]$  (en haut) et  $[\sigma(t), \dot{\gamma}(t)]$  (en bas) à (a,b)  $t = 315$  s, (c,d)  $t = 16087$  s, et (e,f)  $t = 3 \cdot 10^4$  s correspondant aux signaux montrés dans les inserts de Fig. 7.6(a). Les lignes en pointillés rouges montrent les pentes  $J'_M$  (en haut) et  $\phi'_M$  (en bas). Les lignes en pointillés bleus indiquent les pentes  $J'_L$  (en haut) et  $\phi'_L$  (en bas). Voir aussi le film supplémentaire 15 pour voir l'ensemble des données.

pour  $t > \tau_f$  est un état fluide où l'inertie domine les données rhéologiques.

### Courbes de Lissajous et mesures en LAOS-Stress

La croissance de la non-linéarité et la transition vers un état fluidifié s'observe aussi sur les courbes de Lissajous de la figure 7.9 (voir aussi la vidéo supplémentaire 15). Ici, les trois signaux de la figure 7.6(a) et représentatifs des différentes étapes du processus de fluidification, sont représentés en traçant la déformation  $\gamma(t)$  en fonction de la contrainte  $\sigma(t)$  [Fig.7.9(a),(c) et (e)] et le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  [dérivée de  $\gamma(t)$ ] en fonction de  $\sigma(t)$  [Fig.7.9(b),(d) et (f)]. Les ellipses initiales [Fig.7.9(a),(b)] indiquent que la réponse est élastique et quasi-linéaire. Le fait que le demi-petit axe de l'ellipse est plus petit que son demi-grand axe (notons aussi le changement de l'échelle verticale dans les différentes courbes de Lissajous au cours du temps) indique que l'élasticité prédomine sur la viscosité. Au voisinage de la mise en écoulement apparente à  $\tau_w$ , le cycle se déforme fortement du fait de la non-linéarité du signal  $\gamma(t)$  et son aire augmente rapidement [Fig.7.9(c),(d)]. Un peu plus tard, les courbes de Lissajous retrouvent une forme elliptique qui sont alors dominées par la viscosité [Fig.7.9(e),(f)]. Notons que le déphasage (c'est-à-dire l'orientation du demi-grand axe par rapport au demi-petit axe) dans la figure 7.9(e) devient plus grand que  $\pi/2$ . Ceci est dû au fait que le signal de contrainte correspond à la contrainte totale, qui est dominée par le terme d'inertie [voir équation (7.4)] dans la dernière partie de l'expérience. Comme le terme d'inertie évolue comme la dérivée seconde de  $\gamma(t)$ , cela correspond à un déphasage de  $\pi$  ce qui explique l'orientation de l'ellipse et la pente négative de  $J'_L$  dans la figure 7.9(e), mais aussi le croisement dans le cycle dans la figure 7.9(f).

Comme rappelé au paragraphe 7.3.3 et indiqué par les lignes en pointillés dans la figure 7.9, les courbes de Lissajous peuvent être analysées et interprétées plus en détail grâce à la pente de leurs tangentes en  $\sigma = 0$  et à la pente des lignes joignant leurs extrémités dans le but d'estimer les coefficients élastiques ( $J'_M$  et  $J'_L$ ) et visqueux ( $\phi'_M$  et  $\phi'_L$ ). Les mêmes mesures peuvent être obtenues à partir de leurs expressions en fonction des

coefficients de Fourier données par les équations (7.9) et (7.12). On peut vérifier sur les figures 7.10 et 7.11 que ces deux moyens d'obtenir les coefficients et les rapports correspondant  $R$  et  $Q$  sont en excellent accord. Les estimations qui reposent sur les courbes de Lissajous sont naturellement sujettes à plus de dispersion expérimentale, surtout pour  $\phi'_M$  du fait de la différentiation du signal de déformation et de la détermination de la tangente en  $\sigma = 0$ . Le plus grand défaut du processus de mesure en LAOS-Stress qui apparaît dans la figure 7.10 est la dépendance temporelle pour  $t > \tau_f$  : les deux coefficients de complaisance  $J'_M$  et  $J'_L$  deviennent négatifs et puis décroissent fortement tandis que les deux coefficients de fluidité  $\phi'_M$  et  $\phi'_L$  augmentent fortement. Cependant, comme on l'a dit plus haut, les données pour  $t > \tau_f$  sont dominées par l'inertie de la géométrie et les informations sur le comportement de l'échantillon sont cachées dans la contribution de la contrainte inertielle. Par conséquent, bien que l'augmentation des coefficients de fluidité,  $\Phi'_L$  et  $\Phi'_M$  soit attendue pour un fluide à seuil, seules les mesures pour  $t < \tau_f$  ne doivent être considérées.

Les inserts de la figure 7.10 montrent des agrandissements de  $J'_M$ ,  $J'_L$ ,  $\phi'_M$ , et  $\phi'_L$  pour  $t < \tau_f$ . On peut alors observer que les complaisances  $J'_L$  et  $J'_M$  augmentent toutes les deux faiblement pour  $t < \tau_w$ , ce qui correspond à un lent ramollissement (softening) global du gel de noir de carbone déjà observé dans la réponse initiale du module élastique  $G'$  [voir Fig.7.6(a)]. Les fluidités correspondantes  $\phi'_M$  et  $\phi'_L$  restent très proches de zéro comme attendu pour un matériau solide. Par ailleurs, l'indice de ramollissement (stress-softening)  $R$  reste négligeable pour  $t < \tau_w$  [voir Fig.7.11(a)]. En d'autres termes, la réponse intra-cycle (ou du moins la différence entre le comportement de la contrainte maximale et de la contrainte minimale) ne montre pas de fluidification (stress-thinning) ni d'épaississement (stress-thickening) bien que la non-linéarité augmente progressivement pour  $t < \tau_w$  et atteigne son maximum en  $t \simeq \tau_w$ . Notons que pour  $t < \tau_w$ , l'indice de fluidification (stress-thinning) ne peut être défini car  $\phi'_M \simeq \phi'_L \simeq 0$ . La dépendance temporelle de toutes les mesures de LAOS-Stress change dramatiquement à  $t \simeq \tau_w$ , où elles augmentent fortement. Ceci reflète la perte progressive d'élasticité et la fluidification progressive du matériau. Comme on peut le voir sur la figure 7.11, ce changement de comportement se retrouve dans les valeurs de  $R$  et  $Q$  qui deviennent de l'ordre de l'unité pour  $\tau_w \lesssim t \lesssim \tau_f$ . Ceci traduit un apparent ramollissement (stress-softening) et une fluidification (stress-thinning) significatifs du gel de noir de carbone au cours d'une oscillation. Ici encore, pour  $t > \tau_f$ , la prédominance de l'inertie ne nous permet pas de conclure sur les relaxations finales de  $R$  et  $Q$ .

### 7.4.3 Imagerie ultrasonore de la fluidification

Les analyses en LAOS-Stress présentées ci-dessus sont intéressantes et nous éclairent sur le processus de fluidification retardée du gel de noir de carbone. En particulier, elles permettent de clairement définir deux échelles de temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$  caractéristiques de la dynamique de fluidification. Cependant, cela suppose que le champ de déformation reste homogène tout au long de l'expérience. En d'autres termes, les données ci-dessus ne peuvent être considérées que comme le résultat d'une moyenne spatiale sur tout l'échantillon. Ces données incluent également les couches limites qui peuvent se former aux parois par un éventuel glissement et qui peuvent avoir une influence cruciale sur la mesure. Il est donc, une fois encore, primordial d'avoir une vision locale de cette

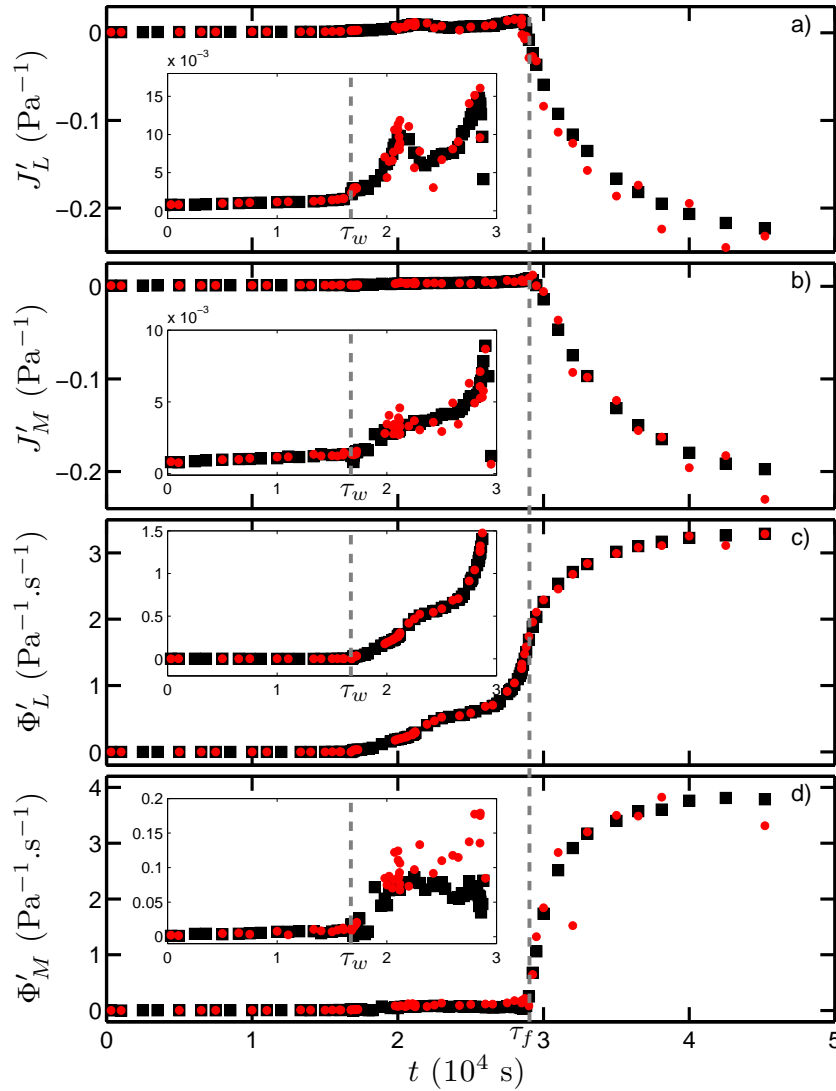


FIGURE 7.10 – Évolution temporelle des coefficients (a)  $J'_L$ , (b)  $J'_M$ , (c)  $\phi'_L$ , et (d)  $\phi'_M$ , définis par les équations 7.10, 7.9, 7.12 et 7.11. Les carrés noirs correspondent à une estimation qui repose sur les coefficients de Fourier tandis que les ronds rouges sont estimés à partir des pentes des courbes de Lissajous. Les inserts sont des zooms des graphes principaux pour  $t < \tau_f$ . Les lignes en pointillés gris indiquent les temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$ . Même expérience que Fig.7.6 :  $\sigma_0 = 11$  Pa,  $f_0 = 1$  Hz et  $C = 6\%$ .

fluidification. Tournons nous à présent vers l'imagerie ultrasonore dans le but de vérifier l'homogénéité de la déformation au sein de l'échantillon.

La figure 7.12 montre deux diagrammes spatio-temporels des images de speckle ultrasonore après formation de voie  $S(r, z, t)$  enregistrées durant la même expérience que dans l'analyse précédente (Fig.7.6–7.11), avec une fréquence d'échantillonnage  $f_{\text{PRF}} = 0,2$  Hz. Les images ultrasonores sont donc enregistrées toutes les cinq oscillations au même instant dans le cycle (voir aussi la vidéo supplémentaire 16). Les niveaux de couleurs correspondent à l'intensité de l'image  $S$  à une position verticale fixée  $z_0$  correspondant au milieu de la cellule de Couette [Fig.7.12(a-b)] et à une posi-

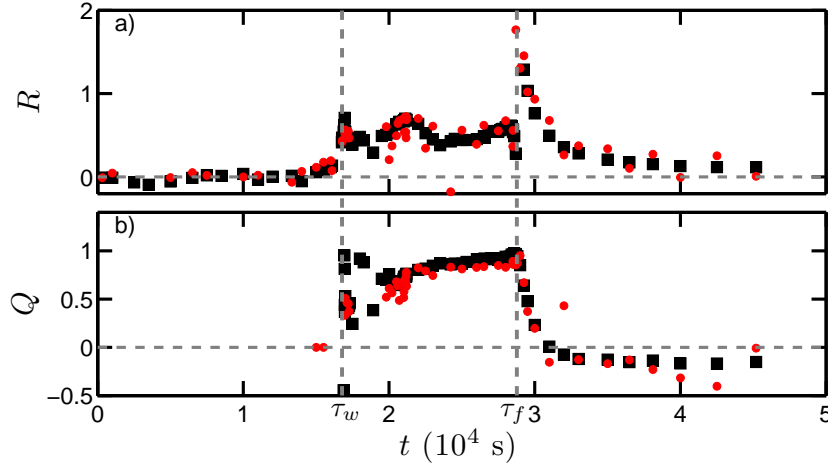


FIGURE 7.11 – Évolution temporelle de (a) l'indice de ramollissement  $R = (J'_L - J'_M)/J'_L$  et (b) l'indice de fluidification  $Q = (\phi'_L - \phi'_M)/\phi'_L$  calculés à partir des données de la figure 7.10. Les carrés noirs correspondent à une estimation basée sur les coefficients de Fourier tandis que les ronds rouges sont estimés à partir des pentes des courbes de Lissajous. Les lignes en pointillés gris indiquent les temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$ . Même expérience que Fig.7.6 :  $\sigma_0 = 11$  Pa,  $f_0 = 1$  Hz et  $C = 6\%$ .

tion horizontale fixée  $r_0$  correspondant au milieu de l'entrefer [Fig.7.12(c-d)]. La distance  $r$  est mesurée à partir du cylindre intérieur tandis que  $z$  est mesuré à partir du haut du réseau de transducteurs. Dans les deux cas, l'axe horizontal de ces figures correspond au temps  $t$  de l'expérience et les lignes verticales en pointillés blancs indiquent les deux temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$  définis précédemment à partir des données rhéologiques. On peut alors distinguer trois régimes sur la figure 7.12.

- (i) Pour  $t < \tau_w$ , les lignes horizontales dans le diagramme spatio-temporel montrent que l'échantillon revient exactement à la même position d'une oscillation à l'autre. Ceci indique un déplacement réversible des particules ensemençant le système ce qui est cohérent avec une réponse élastique du gel.
- (ii) Pour  $\tau_w < t \lesssim \tau_f$ , la réponse solide de l'échantillon est perdue et un motif complexe et hétérogène du speckle est observé.
- (iii) Pour  $t \gtrsim \tau_f$ , une décorrélation complète des motifs du speckle dans les deux directions  $r$  et  $z$  est observée.

Plus précisément, pour  $t \gtrsim \tau_w$ , le speckle dans la figure 7.12(a) présente une pente constante sur tout l'entrefer. Ceci confirme un glissement de tout l'échantillon aux parois d'une oscillation à l'autre. Par conséquent, la mise en écoulement apparente à  $t = \tau_w$  peut être attribuée au glissement aux parois [Graham, 1995]. C'est ce qui explique probablement le mieux la présence d'harmoniques paires dans le signal  $\gamma(t)$  pour  $t \simeq \tau_w$  comme nous l'avons vu plus haut (Fig.7.8). Puis pour  $t \gtrsim 2,1 \cdot 10^4$  s, les motifs du speckle perdent leur corrélation temporelle pour  $r \lesssim 0,2$  mm. Les traceurs acoustiques se déplacent donc sur une distance significative (c'est-à-dire une fraction suffisante de la longueur d'onde ultrasonore  $100 \mu\text{m}$ ) entre cinq oscillations. Nous prenons alors cette décorrélation comme une preuve du déplacement irréversible des traceurs et par conséquent d'une fluidification locale de l'échantillon. Comme Gibaud et al. [2010] l'ont déjà décrit, l'irréversibilité est le plus souvent observée par le biais de la sédimentation des

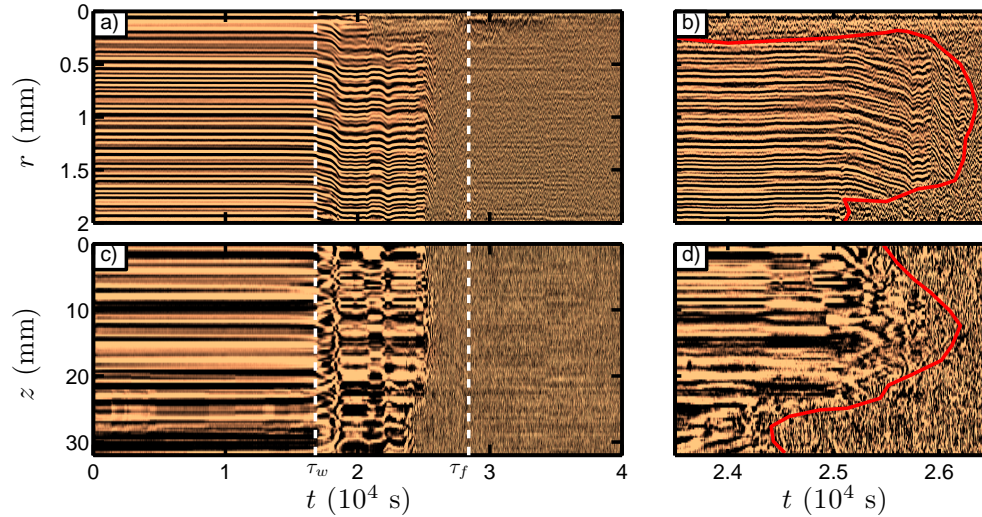


FIGURE 7.12 – **Imagerie ultrasonore d'un gel de noir de carbone à 6% pour une contrainte oscillante d'amplitude  $\sigma_0 = 11$  Pa constante et à  $f_0 = 1$  Hz.** La figure montre des diagrammes spatio-temporels d'images de speckle après formation de voie  $S(r, z, t)$  codés en niveaux de couleurs linéaires et enregistrés simultanément aux données rhéologiques de la figure 7.7. Voir aussi la vidéo supplémentaire 16 pour une animation de ces images de speckle. (a-b)  $S(r, z_0, t)$  à une profondeur  $z_0 = 15$  mm du haut du réseau de transducteur (correspondant à peu près au milieu de la hauteur de la cellule de Couette). (c-d)  $S(r_0, z, t)$  à une position horizontale  $r_0 = 1$  mm du cylindre intérieur en rotation (correspondant au milieu de l'entrefer). (b) et (d) sont des agrandissements de (a) et (c) dans le régime de fluidification  $\tau_w < t < \tau_f$ . La fréquence d'échantillonnage ultrasonore est égale à  $f_{\text{PRF}} = 0.2$  Hz ce qui est un sous-multiple de la fréquence d'oscillation  $f_0 = 1$  Hz. Les lignes en pointillés blancs dans (a) et (b) indiquent les temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$ . Les lignes rouges dans (c) et (d) indiquent la frontière entre les régions encore solides et les régions fluidifiées.

traceurs acoustiques dans le matériau fluidifié. Pour  $r \gtrsim 0,2$  mm, le signal du speckle garde clairement une corrélation temporelle jusqu'à  $t \simeq 2,5 \cdot 10^4$  s [voir Fig. 7.12(b)]. Ceci signifie que pendant près d'une heure l'échantillon reste localement solide sur la plus grande partie de l'entrefer et que ce solide coexiste avec une petite région fluidifiée proche de la paroi mobile. Comme nous l'avons vu sur la figure 7.7, les harmoniques de la réponse en déformation deviennent négligeables lorsqu'on passe de l'état où l'échantillon glisse aux parois à l'état de coexistence solide-liquide à  $t \simeq 2,1 \cdot 10^4$  s. Pour  $t \gtrsim 2,5 \cdot 10^4$  s, le fluidification démarre alors au cylindre extérieur. On remarque que ce temps correspond également à un petit maximum de  $\text{THD}(\gamma)$ . Le matériau bien que fluidifié désormais aux deux parois, reste solide en volume et est progressivement érodé à partir des deux extrémités par la suspension fluidifiée jusqu'à sa fluidification totale (c'est-à-dire la décorrélation complète des motifs de speckle). Ceci intervient à  $t \simeq 2,6 \cdot 10^4$  s du moins pour cette valeur particulière de  $z_0$  considérée dans le diagramme spatio-temporel de la figure 7.12(a,b).

Cette succession d'événements est similaire à celle déjà décrite par Gibaud et al. [2010]. Dans cette publication, l'expérience obtenue à partir d'une technique de vélocimétrie ultrasonore uni-dimensionnelle, présente une amplitude de contrainte plus grande ( $\sigma_0 = 15$  Pa) et est enregistrée à mi-hauteur de la cellule de Couette. Alors que



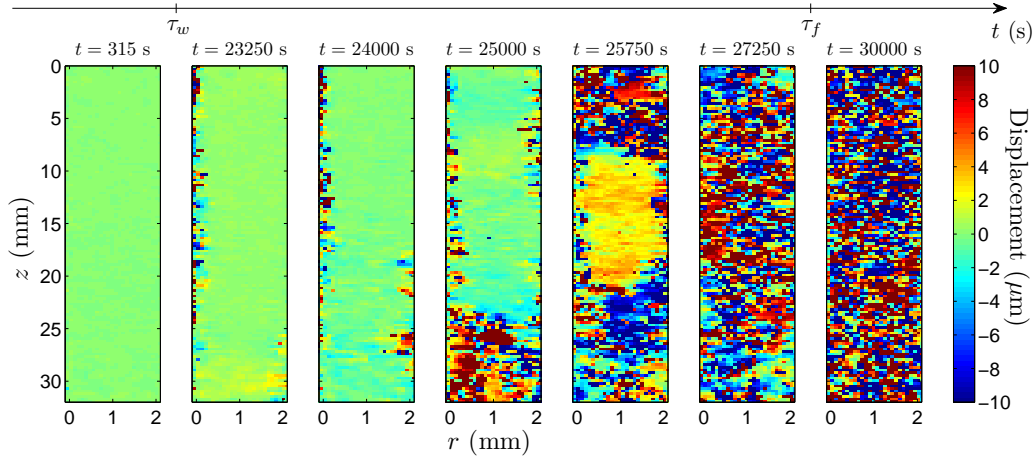


FIGURE 7.13 – Évolution temporelle du champ de déplacement au cours de la fluidification du gel de noir de carbone. Images du champ de déplacement  $\Delta(r, z, t)$  entre deux tirs ultrasonores consécutifs séparés de  $\delta t = 1/f_{\text{PRF}} = 5$  s à différents instants du processus de fluidification du gel. Les déplacements sont codés en niveaux de couleurs linéaires. Même expérience que les figures 7.6 et 7.12 :  $\sigma_0 = 11$  Pa,  $f_0 = 1$  Hz et  $C = 6\%$ . Voir aussi la vidéo supplémentaire 16.

dans [Gibaud et al., 2010] le glissement aux parois apparaît dès que la contrainte est appliquée, ici pour  $\sigma_0 = 11$  Pa, le glissement aux parois survient après un temps long  $\tau_w$ <sup>1</sup>. De plus, l'expérience d'imagerie ultrasonore bi-dimensionnelle présentée ici, nous apporte une vision de ce qui se passe selon la direction verticale. La figure 7.12(c-d) montre qu'une coexistence solide-liquide apparaît également le long de la direction verticale et qu'elle commence plus tard (autour de  $t \simeq 2,4 \cdot 10^4$  s) que le long de la direction radiale. On rappelle ici que la figure 7.12(c-d) correspond à une position donnée dans l'entrefer  $r_0 = 1$  mm où le comportement solide persiste sur des temps plus longs donc il n'est pas surprenant que les speckles restent homogènes verticalement sur des temps plus longs. On note aussi que la fluidification commence à partir du bas de la cellule de Couette puis se poursuit en haut avant de s'étendre vers le milieu de la cellule.

La fluidification dans les deux directions  $r$  et  $z$  est observée pour  $t \simeq 2,6 \cdot 10^4$  s. Après cet instant, le speckle reste complètement décorrélé et on peut considérer que l'ensemble de l'échantillon est devenu totalement fluide. Ce temps de fluidification est environ 10% plus court que celui déterminé plus haut à partir des données rhéologiques :  $\tau_f \simeq 2,8 \cdot 10^4$  s. Cependant, les images ultrasonores analysées sur la figure 7.12 correspondent uniquement à des valeurs spécifiques de  $z_0$  et de  $r_0$ . Aux vues des hétérogénéités radiales et verticales, il est fort probable que l'échantillon soit aussi hétérogène dans la direction orthoradiale. En prenant  $t \simeq 2,6 \cdot 10^4$  s comme temps de fluidification, on sous-estime donc naturellement la fluidification réelle et totale de l'échantillon dans les trois dimensions. De plus, la frontière solide-liquide en rouge représentée sur la figure 7.12(b,d) est seulement indicative et de telles frontières auraient été tracées plus précisément si nous avions utilisé une fréquence d'échantillonnage ultrasonore plus élevée

1. Ceci ne sera plus le cas lorsqu'on appliquera une contrainte oscillante d'amplitude plus grande (voir le paragraphe 7.6.1).

et un critère plus quantitatif pour estimer la décorrélation du speckle. Nous concluons donc ici que l'échelle de temps  $\tau_f$  calculée à partir de la rhéologie correspond à la fluidification tri-dimensionnelle de notre gel de noir de carbone.

Dans le but de confirmer directement le scénario de fluidification déduit des images de speckle, la figure 7.13 représente quelques cartes du champ de déplacement calculé par corrélation successive des images de speckle à différents temps durant la fluidification du gel (voir aussi vidéo supplémentaire 16 pour visualiser l'ensemble des données). La figure 7.13 confirme qu'aucun déplacement significatif n'est observé tant que  $t < \tau_w$ . En revanche, pour  $\tau_w < t < \tau_f$ , on observe une forte hétérogénéité du champ de déplacement. On remarque ainsi premièrement l'apparition d'une fine bande fluidifiée proche du rotor ( $r = 0$ ) puis une nouvelle bande se fluidifie au voisinage du stator ( $r = 2$  mm). Un peu plus tard, une grosse zone fluidifiée émerge au niveau des deux parois cylindriques au bas de la cellule de Couette, puis une autre apparaît en haut laissant persister une zone solide au sein de la cellule. Finalement, pour  $t \gtrsim \tau_f$ , la carte du champ de déplacement apparaît comme totalement erratique spatialement sur l'ensemble du volume de l'échantillon observé. Ceci traduit simplement le fait que les images de speckle dans l'état de fluidification sont décorréliées en temps et que les déplacements irréversibles des particules ensemençant l'échantillon sont trop grands pour être calculés de manière fiable par notre algorithme de corrélation.

## 7.5 Scénario de mise en écoulement

### 7.5.1 Mise en évidence de deux échelles de temps

Le résultat principal de cette première étude est l'existence de deux échelles de temps bien définies  $\tau_w$  et  $\tau_f$  qui caractérisent l'évolution temporelle de la fluidification d'un gel de noir de carbone sous l'effet d'une contrainte oscillante. L'expérience examinée en détails dans les paragraphes 7.4.2 et 7.4.3 montre que ces échelles de temps peuvent atteindre plus de  $10^4$  s. Ceci explique pourquoi une expérience standard de rampe en amplitude de contrainte n'est pas capable d'estimer de manière fiable la réponse en LAOS-Stress d'un gel de noir de carbone. En particulier, ces gels colloïdaux s'écoulent même à des amplitudes de contrainte en-deçà de la contrainte seuil apparente déduite d'une rampe en amplitude. Lorsque l'amplitude de la contrainte est gardée constante, les mesures rhéologiques couplées à l'imagerie ultrasonore montrent que :

- (i) Pour  $t < \tau_w$ , le gel se comporte comme un solide élastique sujet à un lent processus de fatigue,
- (ii) à  $t \simeq \tau_w$ , il cède localement aux parois et par la suite présente un glissement aux parois pour  $t \gtrsim \tau_w$ ,
- (iii) pour  $\tau_w < t < \tau_f$ , l'échantillon est constitué de régions fluidifiées macroscopiques qui coexistent avec des domaines solides qui sont progressivement érodés,
- (iv) pour  $t > \tau_f$ , l'échantillon est finalement complètement fluidifié et les données rhéologiques sont dominées par l'inertie de la géométrie.

De façon intéressante, les récentes expériences de fluage (à contrainte constante, non oscillante) réalisées par Grenard et al. [2014] sur les mêmes gels de noir de carbone avec une géométrie de Couette aux parois rugueuses ont aussi révélé l'existence de deux

échelles de temps, notées  $\tau_c$  et  $\tau_f$ , associées à un scénario similaire. Sous une contrainte de cisaillement stationnaire  $\sigma$ , le matériau est en rotation solide et suit le mouvement du cylindre intérieur jusqu'à ce qu'il cède au rotor à  $t = \tau_c$  et qu'il se fluidifie progressivement de manière également hétérogène jusqu'à  $\tau_f$  où il présente un comportement totalement fluide. Cette similarité entre fluage et LAOS-Stress suggère qu'un même mécanisme de fluidification retardée est en jeu que ce soit sous contrainte constante ou sous contrainte oscillante. Nous y reviendrons un peu plus loin au paragraphe 7.6.2.

## 7.5.2 Comparaison entre les scénarii local et global

Nous allons à présent comparer les caractérisations locales et globales du scénario de fluidification sous contrainte oscillante. Dans toute l'étude présentée ci-dessus, nous avons mis en évidence l'intérêt de l'analyse de Fourier en rhéologie mais aussi des mesures de LAOS-Stress pour caractériser le comportement au cours du temps d'un matériau soumis à une contrainte oscillante. Nos résultats ont aussi révélé les limites des approches qui reposent sur les seules données rhéologiques. En effet, l'imagerie ultrasonore nous a permis de mettre en évidence d'importantes hétérogénéités spatiales pour  $\tau_w < t < \tau_f$  dans les deux directions horizontale et verticale. Une telle hétérogénéité met en doute l'interprétation (si ce n'est la validité) des grandeurs moyennées spatialement fournies par le rhéomètre. En particulier, en présence d'un glissement aux parois, la déformation globale  $\gamma$  donne seulement une indication sur l'amplitude de l'oscillation et n'est pas représentative de la vraie déformation dans le matériau.

De plus, nous nous sommes focalisés sur une seule expérience à  $\sigma_0 = 11$  Pa. Au vu de la complexité du scénario de fluidification, le calcul systématique des coefficients  $J'_M$  et  $J'_L$  et  $\text{'}Phi'_M$  et  $\text{'}Phi'_L$  pour différentes amplitudes de la contrainte  $\sigma_0$  serait trop long. Cependant, il est intéressant de montrer quelques données rhéologiques globales lorsqu'on augmente les valeurs de  $\sigma_0$  que l'on peut rassembler sous la forme d'un diagramme de Pipkin tracé sur la figure 7.14. Les courbes de Lissajous sont ici classées en fonction du temps  $t$  (au lieu de la pulsation  $\omega_0$  dans les diagrammes de Pipkin classiques) et de l'amplitude de la contrainte  $\sigma_0$ . L'évolution des courbes de Lissajous change rapidement au cours du temps lorsqu'on augmente  $\sigma_0$ . Ceci indique que le rapport  $\tau_w/\tau_f$  n'est pas une constante et qu'il dépend fortement de  $\sigma_0$ . En particulier, le comportement élastique est de moins en moins observé pour des contraintes plus grandes que 11 Pa et pour  $t/\tau_f = 0.01$ . Ceci est dû au fait qu'à contraintes élevées, le glissement aux parois apparaît dès que la contrainte est appliquée ce qui est en accord avec Gibaud et al. [2010]. De plus, le fait que les courbes de Lissajous ne forment pas des boucles fermées pour la plus grande amplitude de contrainte présentée et pour des temps courts montre clairement que le matériau évolue sur une échelle de temps inférieure à la période d'une oscillation.

Dans le paragraphe 7.6.1, nous discutons l'évolution de ce scénario de fluidification pour des contraintes plus élevées. En particulier, nous décrivons comment évoluent les deux échelles de temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$  avec  $\sigma_0$ . Dans un second temps, nous nous intéresserons à l'influence de la fréquence des oscillations et de la concentration.

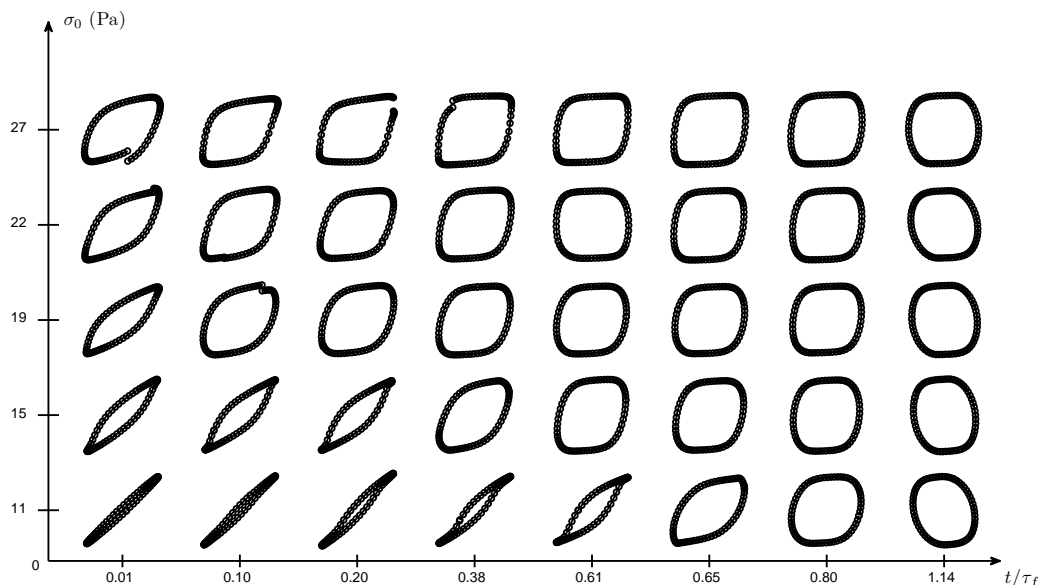


FIGURE 7.14 – Diagramme de Pipkin de la réponse temporelle d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  soumis à des expériences de LAOS-Stress. Courbes de Lissajous  $(\sigma, \gamma)$  à différents temps  $t/\tau_f$  durant le processus de fluidification pour différentes amplitudes  $\sigma_0$  de la contrainte oscillante imposée. La fréquence d'oscillation pour ce diagramme est fixée à 1 Hz dans tous les cas.

## 7.6 Influence de la contrainte, de la fréquence et de la concentration.

### 7.6.1 Un scénario de fluidification qui dépend de $\sigma_0$

Toute l'étude précédente a été consacrée à la détermination d'un scénario de fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  pour une amplitude de contrainte oscillante « faible » de  $\sigma_0 = 11$  Pa et une fréquence d'oscillation  $f = 1$  Hz. Nous avons alors déterminé deux échelles de temps :

- à  $\tau_w$ , l'imagerie ultrasonore montre que le gel glisse aux parois ce qui implique une mise en écoulement apparente du gel avec  $G' = G''$ ,
- et à  $\tau_f$ , on considère que le gel est complètement fluidifié.

Dans un premier temps, en gardant la concentration du gel fixée à  $6\%$  et la fréquence d'oscillation fixée à 1 Hz, nous allons nous consacrer à l'influence de l'amplitude  $\sigma_0$  de la contrainte oscillante sur le scénario de fluidification et sur les temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$ . La figure 7.15 compare l'évolution temporelle des coefficients viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  et de l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$  pour deux amplitudes [(a)  $\sigma_0 = 15$  Pa et (b)  $\sigma_0 = 27$  Pa]. Dans le premier cas, pour  $\sigma_0 = 15$  Pa [Fig.7.15(a)], le scénario de fluidification observé est très similaire à celui décrit dans la partie précédente (où  $\sigma_0 = 11$  Pa). En effet, on retrouve trois étapes bien distinctes : initialement, le gel se comporte comme un solide ( $G' \gg G''$ ), il semble céder ( $G' \simeq G''$ ) à  $\tau_w \simeq 720$  s et s'écouler par la suite comme un liquide ( $G' \ll G''$ ). À  $\tau_f \simeq 3120$  s, on peut considérer que la fluidification de

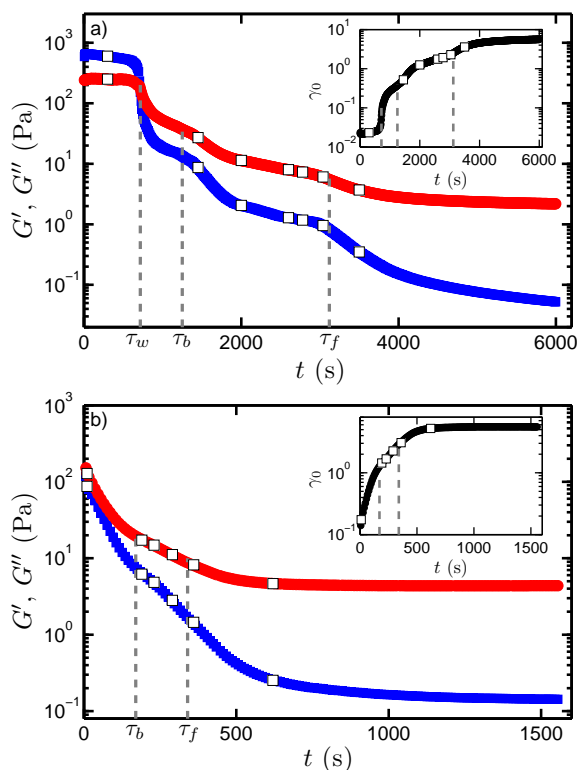


FIGURE 7.15 – Comparaison rhéologique des scénarii de fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  à contrainte faible : (a)  $\sigma_0 = 15$  Pa et contrainte élevée : (b)  $\sigma_0 = 27$  Pa pour une fréquence d'oscillation  $f_0 = 1$  Hz. Évolution temporelle du module élastique  $G'$  (en bleu) et du module de perte  $G''$  (en rouge). (a) À faible contrainte, le gel se comporte initialement comme un solide ( $G' > G''$ ), il semble céder ( $G' \simeq G''$ ) à  $\tau_w \simeq 720$  s et s'écouler par la suite comme un liquide ( $G' < G''$ ). (b) À contrainte élevée, le gel semble céder et s'écouler dès le début de l'expérience. Les inserts montrent l'évolution temporelle de l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$ . Dans le régime solide, les déplacements sont faibles puis ils augmentent d'environ deux ordres de grandeurs pour finalement saturer à une valeur maximale dans le régime fluide. Voir aussi vidéos supplémentaires 17 et 18. Les symboles ( $\square$ ) indiquent les temps correspondant aux images ultrasonore de la figure 7.16.

l'échantillon est complète. En insert, l'évolution temporelle de  $\gamma_0$  montre comme précédemment les différents points d'inflexion correspondant aux maxima local et global de  $d\gamma_0/dt(t)$  aux temps  $\tau_w$  et  $\tau_f$ . Dans le deuxième cas, pour  $\sigma_0 = 27$  Pa [Fig.7.15(b)], le scénario de fluidification est différent. En effet, alors que pour une contrainte faible le glissement aux parois survient au bout d'un long temps  $\tau_w$ , à contrainte plus élevée la mise en écoulement apparente est très rapide : dès le premier point de mesure accessible à  $t = 6$  s on a  $G' > G''$  : le gel semble céder et s'écouler dès le début de l'expérience. Finalement, à  $\tau_f \simeq 340$  s le gel est considéré comme totalement fluidifié. Pour comprendre cette différence de comportement selon l'amplitude de la contrainte, tournons nous à présent vers l'imagerie ultrasonore.

Les champs de déplacement des expériences présentées sur la figure 7.15 ont été mesurés simultanément aux données rhéologiques. Ceci nous a permis de mettre en

évidence deux scénarii de fluidification différents, à contrainte élevée et à contrainte faible, ainsi qu'un temps caractéristique supplémentaire  $\tau_b$  venant s'ajouter aux deux temps caractéristiques  $\tau_w$  et  $\tau_f$  déjà définis<sup>2</sup>. La figure 7.16 illustre une succession d'images de champ de déplacement  $\Delta(r, z, t)$  entre deux tirs ultrasonores consécutifs séparés de  $\delta t = 1/f_{\text{PRF}} = 1$  s, et montrées à différents temps au cours de la fluidification du gel.<sup>3</sup> Les instants correspondants sont signalés sur les données rhéologiques par les symboles ( $\square$ ). La position du rotor est à  $r = 0$  mm et celle du stator à  $r = 2$  mm. La figure 7.16(a) [resp. (b)] illustre la fluidification du gel pour l'amplitude de contrainte oscillante  $\sigma_0 = 15$  Pa [resp.  $\sigma_0 = 27$  Pa]. Comparons alors les deux modes de fluidification observés en découplant le scénario en plusieurs étapes :

- Pour  $0 < t < \tau_w$ , à faible contrainte, le gel reste complètement solide et adhère aux parois de la cellule de Couette. Aucun déplacement n'est observé en imagerie ultrasonore. L'échantillon se comporte comme un solide élastique et suit les oscillations du rotor. Cette étape n'apparaît pas à contrainte élevée.
- À  $t = \tau_w$ , le gel cède aux parois créant une fine couche fluidifiée au stator et au rotor et provoquant la mise en écoulement apparente du gel :  $G' = G''$ . À faible contrainte,  $\tau_w$  survient au bout d'un long temps tandis qu'à contrainte élevée, la fluidification apparente est instantanée.
- Pour  $\tau_w < t < \tau_b$ , le gel reste solide en volume et on observe un écoulement bouchon. À faible contrainte les déplacements sont très faibles  $\Delta \sim 0$  tandis qu'à contrainte élevée, on observe une rotation solide où  $\Delta \sim 10 \mu\text{m}$ .
- À  $t = \tau_b$ , on observe une décorrélation spatiale du champ de déplacement au niveau des parois. Le gel présente donc une fluidification macroscopique aux parois. Dans le scénario à contrainte élevée, la rotation solide s'arrête et le déplacement devient nul.
- Pour  $\tau_b < t < \tau_f$ , on observe une fluidification spatialement hétérogène du gel. À faible contrainte, il existe deux régions fluidifiées aux parois mais la fluidification est surtout hétérogène suivant la direction verticale  $z$  avec l'apparition de bandes fluidifiées selon  $z$ . En revanche, à contrainte élevée la fluidification est hétérogène suivant  $r$  et homogène suivant  $z$  : elle se fait par érosion progressive du gel du rotor vers le stator, le gel étant alors cisailé selon la direction du gradient de vitesse  $r$ . Dans les deux cas, des zones fluides coexistent avec des zones solides.
- Enfin à  $t = \tau_f$ , le gel est fluidifié de manière homogène dans tout l'espace et se comporte comme une suspension colloïdale<sup>4</sup>.

Autant le scénario à contrainte élevée présentant des inhomogénéités dans la direction du gradient de vitesse  $r$  semble *classique* et a déjà été observé dans les systèmes de carbopol, des émulsions ou encore des micelles géantes, autant le scénario à faible contrainte qui présente une fluidification hétérogène dans la direction de la vorticité  $z$  est plus surprenant.

2. Notons bien ici que le temps  $\tau_b$  est également observable sur l'expérience à  $\sigma_0 = 11$  Pa. Nous ne l'avons pas évoqué précédemment par souci de simplification.

3. Dans les deux expériences présentées, la fréquence de répétition des tirs est  $f_{\text{PRF}} = 1$  Hz qui est égale ici à la fréquence d'oscillation du rotor  $f_0 = 1$  Hz.

4. La fluidification du gel se définit par une décorrélation spatiale totale sur la carte du champ de déplacement. Les traceurs ultrasonores n'étant plus liés à la structure du gel, ils sédimentent ou crèment et c'est ce mouvement vertical qui est enregistré par l'imagerie ultrasonore.

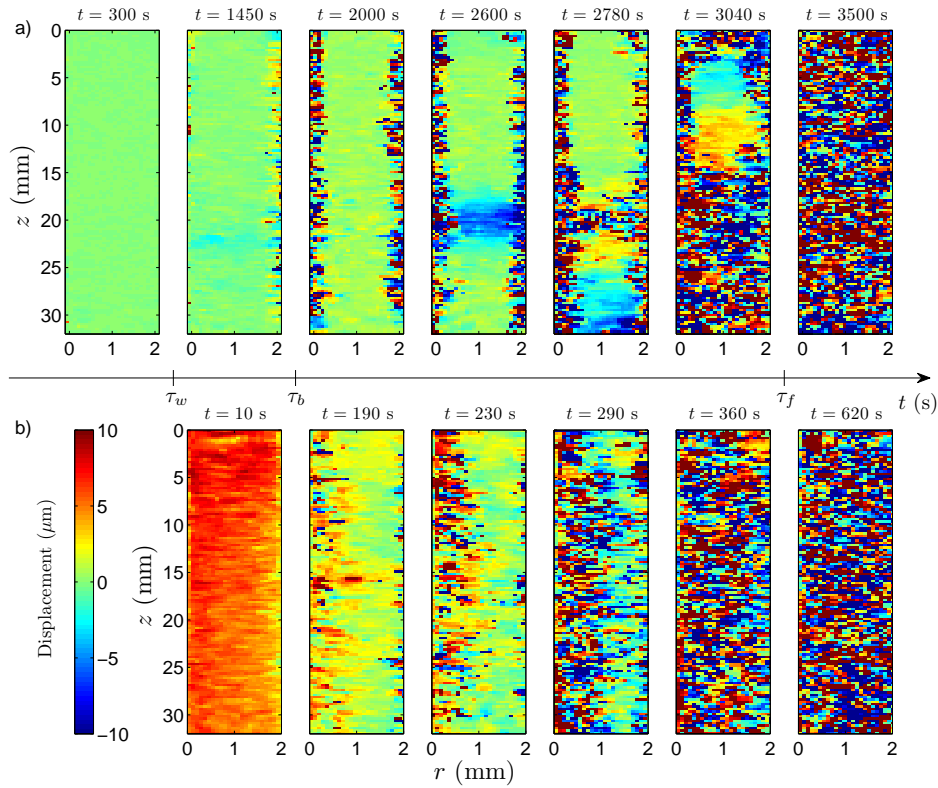


FIGURE 7.16 – Comparaison par imagerie ultrasonore des scénarii de fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$ , (a) à faible contrainte,  $\sigma_0 = 15 \text{ Pa}$  et (b) à contrainte élevée,  $\sigma_0 = 27 \text{ Pa}$  pour une fréquence d'oscillation  $f_0 = 1 \text{ Hz}$ . Images du champ de déplacement  $\Delta(r, z, t)$  entre deux tirs ultrasonores consécutifs séparés de  $\delta t = 1/f_{\text{PRF}} = 1 \text{ s}$  à différents instants du processus de fluidification du gel. Les déplacements sont codés en niveaux de couleurs linéaires. Mêmes expériences que la figure 7.15. Voir aussi vidéos supplémentaires 17 et 18.

Grâce à la définition de ces trois temps caractéristiques, nous pouvons construire un diagramme d'état dynamique représentatif du processus de fatigue d'un gel de noir de carbone. Sur la figure 7.17, nous avons tracé les temps  $\tau_w$ ,  $\tau_b$  et  $\tau_f$  pour différentes valeurs d'amplitude de contrainte oscillante  $\sigma_0$ . Le temps  $\tau_w$  est le temps où  $G' = G''$  et a été déterminé à partir des données rhéologiques tandis que les temps  $\tau_b$  et  $\tau_f$  ont été estimés à partir des mesures ultrasonore du champ de déplacement. Ces trois temps définissent des frontières entre les différents états que rencontre le gel de noir de carbone au cours de sa fluidification selon qu'on le sollicite à faible contrainte ou contrainte élevée.

La région (1a) représente l'état solide à faible contrainte tandis que la région (2a) représente l'écoulement bouchon et la rotation solide qui survient aux temps courts à contrainte élevée. La région (1b) correspond à la fluidification hétérogène selon  $z$  du gel à faible contrainte marquée par des bandes dans la direction de la vorticit e  $z$  et la r egion (2b) indique la fluidification h et erog ene selon  $r$  du gel  a contrainte  elev ee marqu ee par l' erosion progressive du rotor vers le stator. Enfin dans la r egion (3) le gel est totalement fluidifi e en volume. En bref :

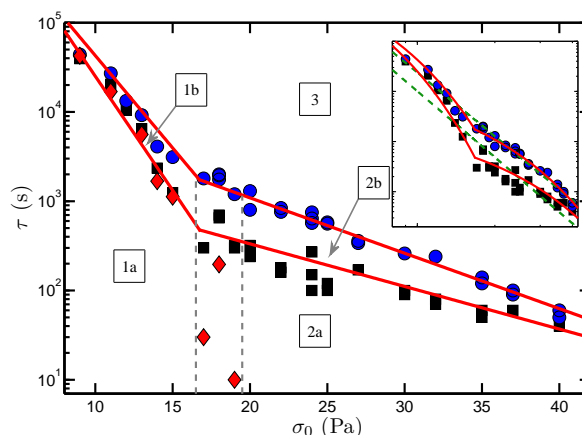


FIGURE 7.17 – Diagramme d'état dynamique du processus de fatigue d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  soumis à une contrainte oscillante d'amplitude  $\sigma_0$  et de fréquence  $f_0 = 1$  Hz. Les temps caractéristiques  $\tau_w$  (♦),  $\tau_b$  (■) et  $\tau_f$  (●) déterminés à partir de la rhéologie et de l'imagerie ultrasonore définissent les frontières entre les différents états : (1a) état solide, (2a) rotation solide, (1b) fluidification hétérogène selon la direction verticale  $z$ , (2b) fluidification hétérogène selon la direction radiale  $r$  et (3) état fluide. Les lignes en pointillés gris indiquent une zone de transition où le scénario de fluidification est une superposition des scénarii 1 et 2. Les lignes rouges indiquent que  $\tau_b$  et  $\tau_f$  suivent des lois de décroissance exponentielle. L'ajustement des données de  $\tau_f \sim \exp(-\sigma_0/\sigma_i)$ ,  $i = 1,2$  donne les contraintes caractéristiques de  $\sigma_1 = 2,1 \pm 0,8$  Pa et de  $\sigma_2 = 6,5 \pm 0,6$  Pa. En insert : visualisation de  $\tau_b$  et  $\tau_f$  en échelles logarithmiques. Les lignes en pointillés vert montrent des ajustements par une loi de puissance d'exposant  $-4,4$  pour  $\tau_b$  et  $-4,2$  pour  $\tau_f$ .

- dans les régions (1a) et (2a), l'échantillon est solide,
- dans les régions (1b) et (2b), il présente une coexistence solide-fluide où les zones solides sont progressivement érodées par les zones fluides,
- dans la région (3) il est considéré comme complètement fluide.

Les temps  $\tau_b$  et  $\tau_f$  semblent suivre des lois de décroissance exponentielle de la forme :

$$\tau \sim \exp(-\sigma_0/\sigma_i) \quad (7.15)$$

avec  $i = 1$  concernant le régime 1 à faible contrainte et  $i = 2$  concernant le régime 2 à contrainte élevée, plutôt qu'une évolution en loi de puissance comme pourrait le suggérer l'insert de la figure 7.17. L'ajustement du temps  $\tau_f$  nous permet de déterminer les contraintes caractéristiques  $\sigma_1 = 2,1 \pm 0,8$  Pa et  $\sigma_2 = 6,5 \pm 0,6$  Pa.

Enfin, on observe que pour  $\sigma \gtrsim 19$  Pa, le temps  $\tau_w \rightarrow 0$ . La rhéologie ne permet plus de déterminer un temps  $\tau_w$  car la mise en écoulement apparente devient trop rapide. Ceci permet de définir une zone de transition  $16 \lesssim \sigma \lesssim 19$  Pa pour laquelle le scénario de fluidification apparaît comme une superposition des scénarii 1 et 2.

## 7.6.2 Vers une modélisation

Au cours de cette thèse, une collaboration a été développée avec Peter Lindstrom pour tenter d'établir un modèle théorique expliquant l'évolution de  $\tau_b$  et  $\tau_f$ . Cette approche, basée à l'échelle microscopique sur la théorie de changement d'état de Kramers



[Kramers, 1940], est une adaptation du modèle de fluidification retardée des gels colloïdaux soumis à une charge constante [Lindström et al., 2012b]. Ce modèle initial décrit par [Sprakel et al., 2011] et Lindström et al. [2012b] a permis de décrire certaines données expérimentales mais repose sur l'hypothèse forte d'une déformation homogène. Notre but ici est de comprendre comment ce modèle est modifié lorsque l'échantillon est soumis à une contrainte oscillante. Toutefois, les avancées sur ces travaux étant trop faibles et de nombreuses questions et interprétations restant encore non élucidées, nous décrirons uniquement les grandes lignes du modèle de fluidification retardée pour un gel colloïdal soumis à une expérience de fluage, c'est-à-dire une contrainte constante  $\sigma_0$  pour tenter de justifier l'évolution en loi de décroissance exponentielle des temps  $\tau_b$  et  $\tau_f$ .

Le modèle de la dynamique de la fluidification du gel à l'échelle de la particule se résume de la manière suivante. Une particule colloïdale est piégée dans un puits de potentiel qui résulte des interactions avec ses voisines. Lorsque le gel est au repos, les fluctuations thermiques induisent des vibrations au niveau des particules qui peuvent conduire à la rupture des liens microscopiques qui les unissent. Lorsqu'aucune force n'est appliquée au gel, le taux de dissociation  $k_D$  peut être calculé en considérant l'équation de diffusion de la distribution de densité des particules dans un potentiel d'interaction entre colloïdes [Kramers, 1940]. On trouve alors une expression de la forme :

$$k_D = \omega_c \exp(-E_A/k_B T) \quad (7.16)$$

où  $\omega_c$  est une fréquence caractéristique (« attempt frequency » en anglais),  $E_A$  est la profondeur du puits de potentiel,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température absolue. La fréquence  $\omega_0$  dépend de la diffusivité des particules et de la forme et de la profondeur de la barrière de potentiel.

Quand une force  $f$  est appliquée sur les liens faiblement attractifs, la barrière d'énergie est diminuée [Evans et Ritchie, 1997]. Le modèle le plus simple consiste à supposer que  $E_A$  est modifiée en  $E_A - f\delta$  où  $\delta$  est la portée caractéristique du potentiel d'interaction. Le taux de dissociation est alors modifié selon [Bell, 1978] :

$$k'_D = k_D \exp(f\delta/k_B T) \quad (7.17)$$

avec  $f\delta < E_A$ . De plus, toujours sous l'effet des fluctuations thermiques, les liens peuvent également se reformer selon un taux d'association  $k_A$  qu'on suppose indépendant de la contrainte appliquée.

Lorsqu'on se place à l'échelle macroscopique, on considère qu'une liaison entre deux « brins » est constituée de plusieurs liens entre particules. La figure 7.18(a) illustre notamment une liaison constituée de sept liens microscopiques. Lorsqu'un lien microscopique se casse, la charge est répartie sur les six autres liens du « brins ». Deux cas de figures peuvent alors se présenter :

- si  $k'_D \gg k_A$  (i. e. à contraintes élevées) : lorsqu'un lien se rompt, les autres liens cassent avant que le premier ne se reforme. Ce processus en cascade implique une fluidification rapide du gel.
- si  $k'_D \ll k_A$  (i. e. à faibles contraintes) : lorsqu'un lien se rompt, il a le temps de se ré-associer avant que les autres liens ne cassent, le brin reste intact. Pour que le gel se fluidifie il faut donc que tous les liens cassent de manière simultanée. Ce processus coopératif est donc beaucoup plus lent que le cas précédent.

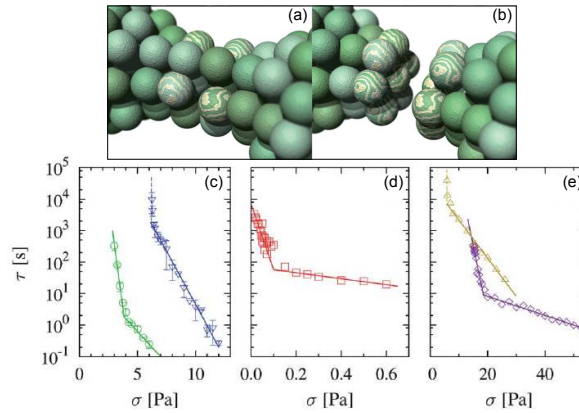


FIGURE 7.18 – **Figure adaptée de [Lindström et al., 2012b] illustrant la fluidification d’un gel colloïdal.** (a) Illustration schématique d’une liaison intacte entre deux « brins » et (b) d’une liaison rompue initialement composée de sept liens. (c), (d) et (e) évolution du temps de fluidification  $\tau$  en fonction de la contrainte de cisaillement appliquée  $\sigma$  lors d’expériences de fluage pour respectivement des gels de silices de fraction volumique  $\phi = 0,25$ , de polystyrène et de noir de carbone de concentration 6% en masse <sup>6</sup>. Les lignes en trait plein indiquent les relations exponentielles tandis que les lignes en pointillés indiquent une divergence vers l’infini.

Lindström et al. [2012b] ont alors montré que dans le régime à faibles contraintes, lorsque  $k'_D \ll k_A$ , le temps de fluidification du gel peut s’écrire :

$$\tau_f \simeq \frac{1}{n^2 k_A} \left( \frac{k_A}{k_D} \right)^n \frac{1}{C \sigma} \exp(-nC\sigma) \quad (7.18)$$

où  $n$  est le nombre de liens entre particules colloïdales au sein d’une liaison entre deux agrégats,  $C = \delta/n\rho_0 k_B T$  a la dimension d’une complaisance où  $\rho_0$  est la densité initiale des liaisons et  $\sigma$  est la contrainte constante appliquée. Tandis qu’à contraintes élevées, lorsque  $k'_D \gg k_A$ , le temps de fluidification du gel s’écrit :

$$\tau_f \simeq \frac{S_n}{k_D} \frac{1}{C \sigma} \exp(-C\sigma) \quad (7.19)$$

où  $S_n \simeq \epsilon + \ln n$  et  $\epsilon = 0,5772\dots$  est la constante d’Euler. Ce modèle prédit donc deux régimes où le temps de fluidification suit, à une correction logarithmique près, une loi en exponentielle décroissante en fonction de la contrainte et séparés par une contrainte critique  $\sigma_c$  qui s’écrit :

$$\sigma_c = \frac{1}{C} \ln \frac{k_A}{k_D}. \quad (7.20)$$

Ce changement de comportement à faibles contraintes et contraintes élevées lorsqu’on soumet un gel colloïdal à une contrainte constante a été observé pour un gel de noir de carbone (CB) mais également pour d’autres systèmes tels que des gels de silice ( $\text{SiO}_2$ ) ou encore des gels de polystyrène (PS) [Lindström et al., 2012b]. Les figures 7.18 (c), (d) et (e) illustrent l’évolution du temps de fluidification  $\tau$  en fonction de la contrainte appliquée  $\sigma$  pour ces trois systèmes et montrent une rupture de pente assez marquée. Cette évolution de  $\tau_f$  selon deux lois en exponentielle et cette distinction

entre régime de faible contrainte et contrainte élevée que l'on observe également pour une sollicitation en contrainte oscillante  $\sigma(t) = \sigma_0 \cos(\omega t)$ , incite à adapter ce modèle au LAOS.

Tournons-nous à présent vers une autre observation. La fluidification sous contrainte oscillante du gel de noir de carbone montre une grande inhomogénéité au sein de l'écoulement. Cette inhomogénéité laisse à penser que des forces normales jouent un rôle. La géométrie de Couette ne permettant pas de mesurer de telles forces, nous avons réalisé des expériences de fluidification d'un gel de noir de carbone sous contrainte oscillante dans une géométrie cône-plan dont les résultats sont décrits au paragraphe suivant.

### 7.6.3 Apparition de forces normales lors de la coexistence fluide-solide

De manière à confirmer l'influence des forces normales sur le processus de fluidification, nous avons effectué des mesures dans une géométrie cône-plan qui permet de mesurer la première différence de contrainte normale  $N_1$ . La figure 7.19 illustre une expérience de fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  soumis à amplitude de contrainte oscillante  $\sigma_0 = 20$  Pa correspondant au régime de *contrainte élevée* et une fréquence  $f_0 = 1$  Hz. La figure 7.19(a) montre l'évolution temporelle de  $G'$ ,  $G''$  et  $\gamma_0$  dont le comportement est très similaire à celui observé dans une cellule de Couette. Ceci montre donc que ce scénario semble indépendant de la géométrie utilisée. À  $t = 0$ , on a  $G'' > G'$  : le gel cède directement aux parois et semble s'écouler comme un liquide. Un peu plus tard, l'évolution de  $\gamma_0$  présente deux points d'inflexion permettant de mesurer les temps  $\tau_b$  et  $\tau_f$  qui en absence de visualisation ultrasonore seront déterminés dans cette géométrie à partir de la rhéologie seule. En reportant ces temps dans l'évolution temporelle de  $N_1$  [Fig.7.19(b)], on remarque que pour  $0 < t < \tau_b$  on mesure une valeur positive de  $N_1$ . Dès que  $t > \tau_b$  la première différence de force normale redevient nulle. En réalisant ces expériences trois fois, l'émergence des ces forces normales positives a pu être confirmée. Ce résultat est intéressant car il va dans le sens du modèle de fluidification retardée qui pour des conditions aux bords molles prédit une contrainte normale positive durant la phase de coexistence solide-fluide. Cependant, des expériences de mesures de  $N_1$  à faibles contraintes et notamment dans le régime 1 doivent être effectuées pour tenter de comprendre si ces forces normales sont liées uniquement au scénario de fluidification du régime 2 ou si elles apparaissent pour toute amplitude de contrainte  $\sigma_0$ .

### 7.6.4 Influence de la fréquence d'oscillation et de la concentration

Après avoir mis en évidence la présence de contraintes caractéristiques  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$ , mesurées pour une concentration  $C = 6\%$  et une fréquence d'oscillation  $f = 1$  Hz, voyons comment ces valeurs évoluent en fonction de ces deux paramètres.

Premièrement, à concentration fixée, lorsqu'on effectue une série d'expériences en contrainte oscillante pour une autre fréquence d'oscillation, on retrouve toujours les

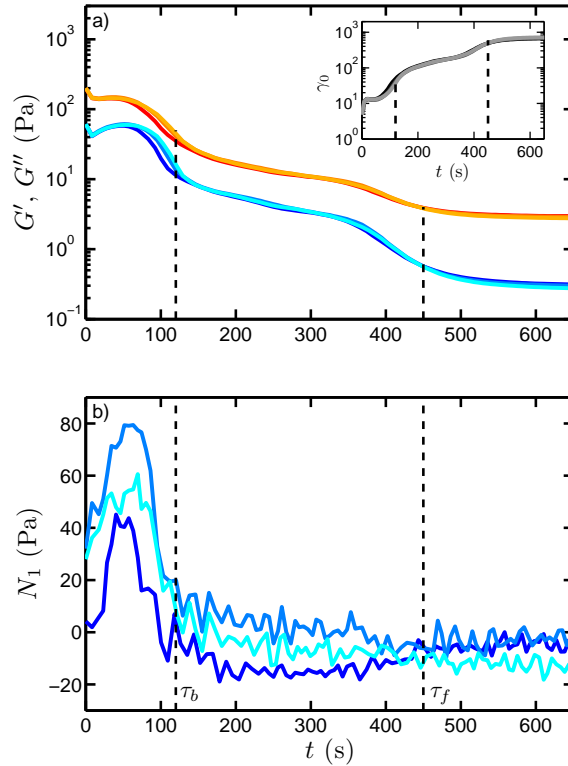


FIGURE 7.19 – Évolution temporelle des données rhéologiques d’un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$  soumis à une contrainte oscillante d’amplitude  $\sigma_0 = 20$  Pa et de fréquence  $f_0 = 1$  Hz dans une géométrie cône-plan. (a) Évolution temporelle du module élastique  $G'$  (en bleu), du module visqueux  $G''$  (en rouge) et de l’amplitude de la déformation  $\gamma_0$  en insert. Le comportement est similaire à celui observé dans une géométrie de Couette lors de la fluidification à contrainte élevée [Fig.7.15(b)]. Évolution temporelle de la première différence de contraintes normales  $N_1$ . Pour  $t < \tau_b$ ,  $N_1$  est positive et pour  $t > \tau_b$ ,  $N_1 \sim 0$ . Les courbes correspondent à trois expériences différentes.

deux mêmes scénarii de fluidification et les régimes 1 et 2 comme décrits sur la figure 7.17. Ceci nous permet pour chaque  $f$  de mesurer une valeur de  $\sigma_1$  et une valeur de  $\sigma_2$ . La figure 7.20(a) montre l’évolution de  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  en fonction de la fréquence d’oscillation  $f$ . Alors que  $\sigma_1$  semble être indépendante de  $f$ ,  $\sigma_2$  a une évolution non monotone et passe par un maximum en  $f \simeq 0,5$  Hz. Pour des fréquences élevées,  $\sigma_2$  croît lorsque la fréquence décroît. Ce comportement semble cohérent avec un processus de « cicatrisation » : plus la fréquence est faible, plus le gel a le temps de se régénérer entre deux oscillations. L’augmentation de  $\sigma_2$  se comprend bien, cependant la décroissance de  $\sigma_2$  à faibles fréquences et la présence de ce maximum est plus inattendue. Est-il dû à la présence d’un temps caractéristique du matériau ?

Dans le but de mieux appréhender ce pic en fréquence, tournons nous à nouveau vers la mesure de forces normales. La figure 7.20(b) présente l’évolution de la première différence de contraintes normales  $\langle N_1 \rangle$  moyennée sur la durée  $\tau_b$  en fonction de la fréquence  $f$  pour un gel de noir de carbone de concentration  $C = 4\%$ . On observe alors, vers  $f \sim 0,5$  Hz, une correspondance entre la présence d’un minimum pour  $\langle N_1 \rangle$  ( $\langle N_1 \rangle \sim 0$ ) et le maximum atteint par  $\sigma_2$ . Un travail plus approfondi sur la relation

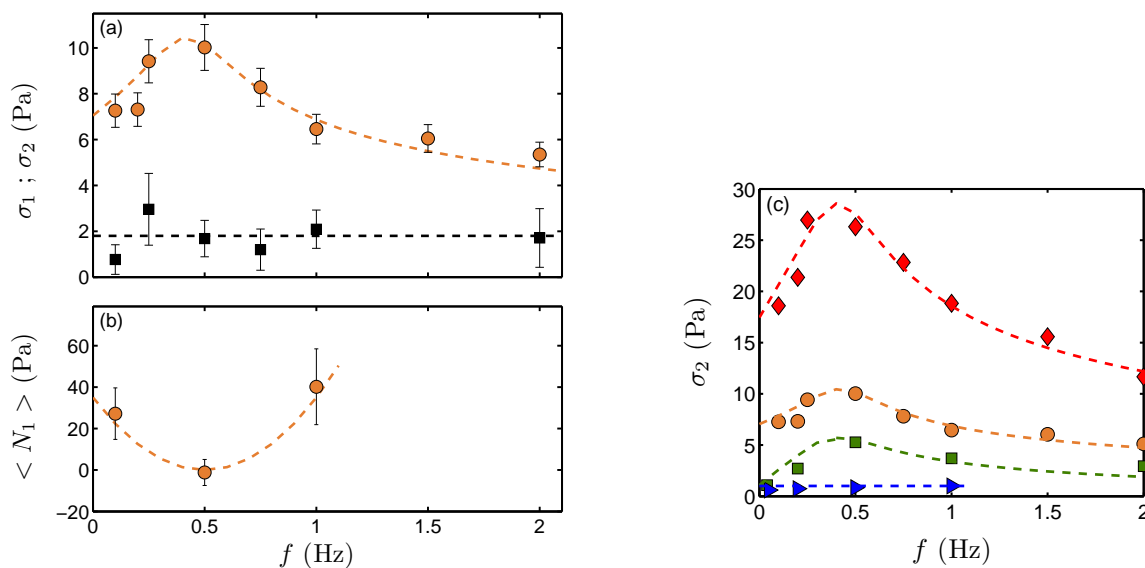


FIGURE 7.20 – Évolution des paramètres  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\langle N_1 \rangle$  en fonction de la fréquence d'oscillation  $f$ . À gauche : relation entre (a) les contraintes caractéristiques  $\sigma_1$  (■) et  $\sigma_2$  (●) et (b) la première différence de contrainte normale  $\langle N_1 \rangle$  moyennée de  $t = 0$  à  $t = \tau_b$  tracés en fonction de la fréquence d'oscillation  $f$  pour un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$ . À  $f \simeq 0,5$  Hz,  $\sigma_2$  passe par un maximum tandis que  $\langle N_1 \rangle$  présente un minimum. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux. À droite : (c) Évolution du coefficient  $\sigma_2$  en fonction de la fréquence d'oscillation  $f$  pour un gel de noir de carbone de concentration  $C = 4$  (■), 6 (●) et 8% (◆). La position du maximum semble être indépendante de la concentration. Lorsqu'on ajoute du tensioactif dans le gel de noir de carbone à  $C = 4\%$  (►),  $\sigma_2$  ne dépend plus de la fréquence.

entre le minimum de  $\langle N_1 \rangle$  et le maximum de  $\sigma_2$  ainsi que sur leur interprétation est encore en cours. De plus, les liens entre les résultats expérimentaux et l'adaptation du modèle de fluidification retardée devront être précisés.

Enfin, la figure 7.20(c) illustre l'évolution du coefficient  $\sigma_2$  en fonction de la fréquence d'oscillation  $f$  pour différentes concentrations : 4, 6 et 8%. On remarque alors que  $\sigma_2$  augmente avec la concentration du gel. Ce résultat peut s'interpréter de la manière suivante. En augmentant la concentration, la structure du gel est renforcée, la fraction volumique occupée par le gel croît et les interactions entre agrégats sont plus fortes ce qui a tendance à augmenter le coefficient  $\sigma_2$ . Enfin on remarque qu'en ajoutant un tensioactif, l'attraction entre les particules de noir de carbone est fortement diminuée,  $\sigma_2$  passe de 5,26 Pa à 0,83 Pa pour  $f = 0,5$  Hz et la dépendance en fréquence est perdue.

### 7.6.5 Sollicitation en contrainte oscillante : disparition du seuil en amplitude ?

Le dernier point que nous souhaitons discuter est l'existence d'un seuil en amplitude pour une sollicitation en contrainte oscillante. Nous avons vu que pour un fluide à seuil, déterminer la contrainte limite en-deçà de laquelle il ne peut s'écouler n'est pas

évident. Concentrons-nous sur l'étude d'un gel de noir de carbone de concentration  $C = 6\%$ . Premièrement, en effectuant une rampe en amplitude de contrainte oscillante à une fréquence d'oscillation fixée pour une vitesse de rampe de  $34 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$  donne une contrainte seuil de  $\sigma_{y1} = 16,6 \text{ Pa}$  [voir Fig.7.5]. Nous avons vu que la contrainte seuil apparente dépend de la vitesse de la rampe et peut varier de  $14,6$  à  $16,6 \text{ Pa}$  pour la gamme étudiée [voir Fig.7.5]. Deuxièmement, la courbe d'écoulement  $\sigma$  en fonction de  $\dot{\gamma}$  de la figure 7.4 (à droite) donne à partir d'un ajustement par une loi de Heschel-Bulkley ( $\sigma = \sigma_{y2} + A\dot{\gamma}^n$ ), une valeur de la contrainte seuil  $\sigma_{y2} = 22,5 \text{ Pa}$  qui dépend également de la vitesse de la rampe. Troisièmement, l'étude en fluage réalisée par Grenard et al. [2014] montre un seuil  $\sigma_c = 9,8 \text{ Pa}$  en-deçà duquel aucune fluidification du gel n'est observée. Dans le cas des expériences en contrainte oscillante présentées dans ce chapitre, la courbe de la figure 7.17 ne semble pas présenter de seuil en amplitude  $\sigma_0$ . Même pour une amplitude de contrainte de  $\sigma_0 = 9 \text{ Pa}$ , le gel s'est toujours fluidifié au bout d'un temps  $\tau_f$ . En appliquant une amplitude de  $\sigma_0 = 5 \text{ Pa}$  et dans l'hypothèse que le régime observé à cette contrainte soit le même, on s'attend à un temps de fluidification de  $\tau_f \simeq 4.10^5 \text{ s}$  soit un peu moins de 5 jours. Bien évidemment, les paramètres des expériences en fluage et des expériences en oscillation sont différents (rugosité aux parois, taille d'entrefer, courbure, type de rhéomètre) et sont par conséquent difficilement comparables. Cependant les derniers résultats sous oscillations laissent penser que le processus de fatigue a tendance à diminuer le seuil en amplitude jusqu'à le faire éventuellement disparaître.

## 7.7 Bilan général du chapitre

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés au comportement d'un matériau ductile, un gel de noir de carbone, qui présente une fluidification retardée lorsqu'on lui applique une charge externe. Ici, notre travail s'est focalisé sur le mode de sollicitation par contrainte oscillante : le LAOS-Stress. En combinant l'analyse des données rhéologique par transformée de Fourier avec la technique d'imagerie bi-dimensionnelle, nous avons mis en évidence deux scénarii de fluidification de ce gel colloïdal, à contrainte faible et élevée, ainsi que trois temps caractéristiques :  $\tau_w$ ,  $\tau_b$  et  $\tau_f$ . La rhéologie par transformée de Fourier, sur une expérience à  $f = 1 \text{ Hz}$  et  $\sigma_0 = 11 \text{ Pa}$ , montre qu'entre  $\tau_b$  et  $\tau_f$ , le gel présente un ramollissement et une fluidification significatifs au sein d'une oscillation marqués par des valeurs de  $R$  et  $Q$  positives. L'ajustement du temps de fluidification  $\tau_f$  nous a permis de déterminer deux contraintes caractéristiques  $\sigma_1 = 2,1 \pm 0,8 \text{ Pa}$  et  $\sigma_2 = 6,5 \pm 0,6 \text{ Pa}$ , à basse et haute contrainte respectivement, relatives à une loi de décroissance exponentielle de la forme :  $\tau_f \sim \exp(-\sigma_0/\sigma_i)$ ,  $i = 1,2$ . Une adaptation du modèle de fluidification retardée de Sprakel et al. [2011] et Lindström et al. [2012a] est en cours pour tenter d'expliquer théoriquement ces comportements. Enfin, l'influence de la fréquence d'oscillation et de la concentration a été étudiée. On observe alors un maximum dans l'évolution du coefficient  $\sigma_2$  avec la fréquence qui est d'autant plus marqué que la concentration du gel est élevée. L'explication de ce maximum est encore en cours et passe sans doute par la compréhension de l'émergence de forces normales pour  $t < \tau_b$ .

Notons ici que ces résultats font l'objet d'une publication acceptée à Journal of

Rheology [Perge et al., 2014]. Les discussions avec Thomas GIBAUD (chargé de recherche au laboratoire depuis octobre 2012) sur l'interprétation de ces résultats ont été d'une aide non négligeable pour l'écriture et la synthèse de cet article.

Tournons-nous à présent vers un autre type de gel : un gel de protéine, qui, à l'inverse du gel de noir de carbone, est un matériau fragile qui ne s'écoule pas mais rompt de manière irréversible et présente des fractures macroscopiques lorsqu'on lui applique une charge externe (dans ce cas une contrainte constante).

# Chapitre 8

## Fluage et rupture irréversible d'un gel de protéines

### Sommaire

---

<b>8.1</b>	<b>Introduction et présentation du gel</b>	<b>168</b>
8.1.1	État de l'art	168
8.1.2	Microstructure et processus de gélification	169
<b>8.2</b>	<b>Matériel et méthodes</b>	<b>171</b>
8.2.1	Protocole pour la préparation du gel de caséine	171
8.2.2	Rhéologie linéaire	174
<b>8.3</b>	<b>Un scénario de rupture robuste</b>	<b>175</b>
<b>8.4</b>	<b>Loi de Basquin</b>	<b>176</b>
<b>8.5</b>	<b>Définition des trois régimes de fluage</b>	<b>177</b>
8.5.1	Régime de fluage primaire et fluage d'Andrade	177
8.5.2	Régime de fluage secondaire et relation de Monkman-Grant	178
8.5.3	Régime de fluage tertiaire et croissance finale des fractures	180
<b>8.6</b>	<b>Comparaison avec le fluage du CB</b>	<b>182</b>
<b>8.7</b>	<b>Résumé et discussion</b>	<b>183</b>

---



Les biomatériaux tels que les gels de protéines (caséine,  $\beta$ -lactoglobuline, HSA, BSA...) ou les gels de polysaccharides (agar, carraghénane...) sont connus pour se comporter qualitativement comme des solides mous et pour se rompre lorsqu'on leur applique une contrainte externe. En combinant imagerie optique et ultrasonore avec la rhéologie, nous montrerons dans un premier temps que le scénario de rupture d'un gel de protéines sous contrainte de cisaillement constante est typique des solides fragiles. En effet, après un régime de fluage en loi de puissance caractérisé par une viscoélasticité linéaire et une déformation macroscopique homogène, des fractures nucléent et croissent de manière logarithmique perpendiculairement à la direction du cisaillement pour conduire finalement à la rupture brutale du gel. Nous verrons également qu'une unique équation permet de rendre compte de ces deux processus successifs sur toute la durée de l'expérience. De plus, à l'image de la loi de fatigue de Basquin pour les solides, le temps de rupture du gel de protéines suit une loi de puissance décroissante avec la contrainte de cisaillement. Enfin, ces résultats sont également en excellent accord avec les récents modèles de faisceaux de fibres (FBM) qui prennent en compte l'endommagement des fibres élastiques. Ce modèle FBM apparaît alors comme un modèle pour ces gels de protéines que l'on peut définir alors comme des solides mous cassants.

## 8.1 Introduction et présentation du gel

### 8.1.1 État de l'art

Les biogels formés à travers l'auto-association de polysaccharides en double hélices, de collagène, de filaments d'actine ou de protéines globulaires attractives, jouent un rôle important dans la biochimie et dans la microbiologie [Viovy, 2000; Dorfman et al., 2012], dans les réseaux biologiques et la mécanique des cellules [Dickinson et Merino, 2002] et également dans l'industrie agro-alimentaire [Mezzenga et al., 2005]. Ces biomatériaux se comportent tous comme des solides élastiques sous de faibles déformations mais présentent un comportement non-linéaire généralement accompagné d'un renforcement (« stress-stiffening » ou « strain-stiffening ») [Gardel et al., 2004; Storm et al., 2005] ainsi que de fractures aux grandes déformations [Bonn et al., 1998; Baumberger et al., 2006]. L'irréversibilité découle de l'existence d'un paramètre de contrôle externe, par exemple la température ou le pH dans le cas des gels thermoréversibles ou des gels formés par acidification respectivement. Par conséquent, de tels gels ne peuvent pas se reformer après rupture, contrairement à d'autres matériaux vitreux mous tels que les émulsions, les gels colloïdaux ou encore les verres [Cloitre et al., 2000; Divoux et al., 2012; Siebenbürger et al., 2012]. Jusqu'ici, de gros efforts ont été consacrés à la conception de gels de protéines avec des propriétés et des textures spécifiques au repos Dickinson [2006]; Gibaud et al. [2012]. Cependant, leur comportement mécanique dans le régime non-linéaire n'a été que partiellement abordé van Vliet et Walstra [1995]; Pouzot et al. [2006] et plusieurs questions fondamentales restent inexplorées comme notamment le scénario de rupture ou encore l'éventuelle pertinence physique d'une analogie avec la rupture de matériaux durs et fragiles (verres, métaux à basse température).

Alors que Lucey et al. [1997] se sont focalisés sur la détermination de la contrainte de

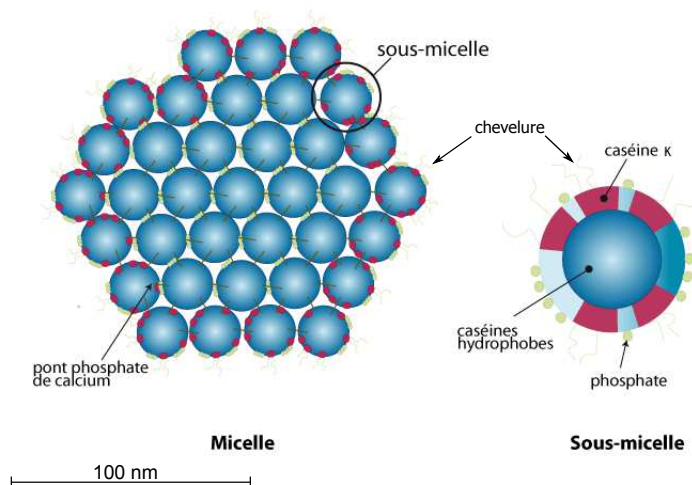


FIGURE 8.1 – **Composition d’une micelle et d’une sous-micelle de caséine.** Figure tirée du site <http://biochim-agro.univ-lille1.fr/proteines>.

rupture lors d’une sollicitation en taux de cisaillement, nous allons nous intéresser ici à la fracture induite par l’application d’une contrainte constante sur un gel de protéines (de la caséine) à l’aide d’expériences de fluage couplées à de l’imagerie optique et ultrasonore. Nous verrons que ces gels formés par acidification lente d’une solution de caséinate de sodium [Lucey et Singh, 1997] présentent des fractures sous de grandes déformations [van Vliet et Walstra, 1995], ce qui en fait de parfaits candidats pour quantifier la fragilité de solides mous et s’attaquer aux problèmes mentionnés ci-dessus.

### 8.1.2 Microstructure et processus de gélification

Le gel de protéines que nous allons étudier est un gel de caséine. La caséine constitue plus de 75% des protéines du lait de vache. Il existe, dans les conditions naturelles, quatre types de molécule : la caséine  $\alpha S_1$ ,  $\alpha S_2$ ,  $\beta$  et  $\kappa$  dont la séquence en acides aminés varie de l’une à l’autre et qui en s’associant créent un édifice plus volumineux : la sous-micelle [voir Fig.8.1]. Plus de 90% de la masse de la sous-micelle est attribuée à l’association des caséines  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\kappa$ . Le reste résulte de la présence de minéraux (phosphate, calcium...). Le diamètre typique d’une sous-micelle est d’environ 10 nm et sa structure n’est pas homogène et reste peu claire. Elle posséderait un cœur hydrophobe constitué de caséines  $\beta$  et une périphérie hydrophile constituée de caséine  $\alpha$  et  $\kappa$ . La caséine  $\kappa$  permettrait de stabiliser l’édifice grâce à une « chevelure » hydrophile qu’elle formerait à la surface de la sous-micelle. Par l’intermédiaire de ponts phosphocalciques, ces sous-micelles s’associent pour former une micelle de caséine [voir Fig.8.1]. Une micelle de caséine peut contenir entre 10 et 100 sous-micelles pour atteindre une taille qui varie entre 50 et 600 nm. Le diamètre moyen est de 120 nm. Dans le lait, les micelles de caséines sont chargées négativement. Ceci entraîne une répulsion électrostatique qui assure la stabilité du lait. Les fragments de caséine  $\kappa$  (hydrophiles, en périphérie) créent également une couche d’hydratation qui empêchent le rapprochement des colloïdes entre eux.

Dans l’industrie, les gels de caséine, communément appelés « yaourts », sont pré-

parés traditionnellement en trois étapes. Premièrement, on fait bouillir du lait (entier, demi-écrémé ou écrémé) à plus de 90°C pour détruire les micro-organismes pathogènes et indésirables. Dans un second temps, la température du lait est abaissée à environ 45°C et des bactéries lactiques sont ajoutées. À ce stade, l'étape de fermentation commence, les bactéries absorbent le sucre du lait et le transforment en acide lactique qui entraîne une acidification progressive du milieu. L'acide lactique porte des charges positives qui neutralisent les charges négatives des micelles. À pH=4,6 (appelé point isoélectrique de la caséine), on obtient leur neutralité. L'interaction répulsive entre les micelles diminue fortement, ce qui se traduit par un écrasement de la « chevelure » des caséines  $\kappa$  sur la surface extérieure de la micelle. De plus, l'acide déshydrate les micelles, ce qui leur permet de se rapprocher et de se lier par des liaisons hydrophobes. Le gel peut alors se former.

Ainsi, la température et le pH sont tous deux des paramètres de contrôle qui peuvent modifier la stabilité des micelles de caséine. Dans la littérature, on rapporte alors deux processus de gélification : soit par un chauffage suivi d'un refroidissement, soit par acidification.

### Gélification par chauffage

La gélification des protéines peut être obtenue par chauffage suivi d'un refroidissement. À haute température, de l'ordre de 90°C, les ponts phospho-calciques entre les sous-micelles sont rompus ce qui entraîne une déstructuration de la micelle de caséine. Des images de micelles de caséine obtenues par microscopie électronique à balayage (MEB) sur les figures 8.4(d) et (e) montrent un écrasement de la « chevelure » de la micelle après chauffage, ce qui permet de réduire la répulsion entre les micelles et leur permet de s'agréger.

### Gélification par acidification

La micelle de caséine est stable au pH normal du lait (pH=6,8) et à température ambiante. Quand il y a acidification du milieu, il se produit une gélification des protéines. En effet, le potentiel d'interaction répulsif entre les micelles diminue avec la baisse du pH, ce qui permet aux micelles de se rapprocher et de coaguler pour former dans un premier temps des groupes de micelles pouvant aller de 180 nm à 1300 nm de diamètre, puis de créer un réseau tri-dimensionnel constitué de chaînes d'agrégats de caséine. À pH=4,6, on considère que l'agrégation des micelles est irréversible<sup>1</sup>. C'est ce mode de gélification que nous avons choisi. Nous allons donc à présent décrire en détail la composition de notre système ainsi que le protocole suivi pour la préparation du gel de caséine.

---

1. L'acidification doit cependant être progressive pour éviter que des amas de gels ne se forment trop rapidement et sédimentent au fond du récipient. Cette cinétique lente et homogène ne peut pas être obtenue en ajoutant un acide fort (chlorure d'hydrogène par exemple) qui conduirait à une diminution du pH trop violente.

## 8.2 Matériel et méthodes

### 8.2.1 Protocole pour la préparation du gel de caséine

Ici, les gels sont préparés en dissolvant du caséinate de sodium en poudre (Firmenich) dans de l'eau distillée à une concentration de 4%. Pour cela on utilise un agitateur magnétique chauffant classique qui mélange l'ensemble à 35°C et à 500 tr/min jusqu'à obtenir une solution homogène. Pour induire une gélification, 1% de glucono- $\delta$ -lactone (GDL) en poudre (Firmenich) est dissout dans la solution et son hydrolyse abaisse le pH progressivement sur les 8 heures de prise environ (voir Fig.8.2). Pendant qu'elle est encore liquide, on verse la solution dans l'entrefer d'une cellule de Couette poli en Plexiglas immergée dans une cuve d'eau dont la température est contrôlée par un bain thermostaté et est fixée à  $T = 25,0 \pm 0,1^\circ\text{C}$ . Notons ici que pour réaliser les diverses expériences, deux rhéomètres à contrainte imposée ont été utilisés. Les données rhéologiques montrées dans les figures 8.2, 8.5, 8.6 et 8.9 ont été obtenues avec un rhéomètre MCR 301 (Anton Paar) dans une cellule de Couette d'une hauteur 28 mm et d'entrefer 1 mm avec un cylindre intérieur de rayon 24 mm. Tandis que les mesures d'imagerie ultrasonore et optique couplées à la rhéométrie (Fig. 8.10 et 8.12) ont été réalisées avec un rhéomètre ARG2 (TA Instruments) dans une cellule de Couette de hauteur 60 mm et d'entrefer 2 mm avec un cylindre intérieur tournant de rayon 23 mm. L'étude quantitative de l'influence de la taille de l'entrefer sur les dynamiques de la rupture du gel fera l'objet d'un travail ultérieur.

Durant la formation du gel, les données rhéologiques sont enregistrées en imposant des oscillations de faible amplitude de déformation  $\gamma = 0,1\%$  à une fréquence  $f = 1$  Hz. La figure 8.2 illustre le processus de gélification d'une solution de caséinate de sodium de concentration 4% en masse et acidifiée avec 1% en masse de GDL. La figure 8.2 présente les mesures résolues en temps des modules élastiques  $G'$  et visqueux  $G''$  [Fig.8.2(b)] ainsi que la mesure du pH [Fig.8.2(a)] effectuée séparément au cours de la prise dans un bécher<sup>2</sup>. La GDL contient une fonction ester qui, une fois mise en solution au temps  $t = 0$ , s'hydrolyse spontanément en acide gluconique selon la réaction chimique représentée sur la figure 8.3 et conduit à une décroissance lente du pH [Fig.8.2(a)] vers le point isoélectrique de la caséine ( $\text{pH} \simeq 4,6$ ), point où les particules de caséine s'agrègent. En réalité, la gélification commence un peu plus tôt à  $\text{pH} \simeq 5$  comme le montrent les lignes en pointillés gris. À ce point, les modules élastiques et visqueux augmentent soudainement puis passe par un maximum avant de converger vers leurs valeurs stationnaires où  $G' > G''$  [Fig.8.2(b)]. Notons également ici que le maximum est atteint autour du point isoélectrique ( $\text{pH} \simeq 4,6$ ) pour lequel nous n'avons plus d'interaction répulsives entre les micelles de caséines ce qui permet leur agrégation. La décroissance des deux modules à plus faible pH est généralement attribuée à la suracidification qui renforce les interactions électrostatiques répulsives entre les particules de caséine de charge positive [Stricker et al., 2010; Grinnell et Petroll, 2010].

La structure microscopique d'un gel de caséine a été visualisée via diverses techniques d'observation : microscopie confocale à balayage laser (MCBL), microscopie électronique à balayage (MEB) et mettent en évidence la formation d'un réseau tri-

2. Notons que dans le reste du manuscrit, les concentrations seront toutes exprimées en masse, ce qui ne sera plus précisé par la suite.

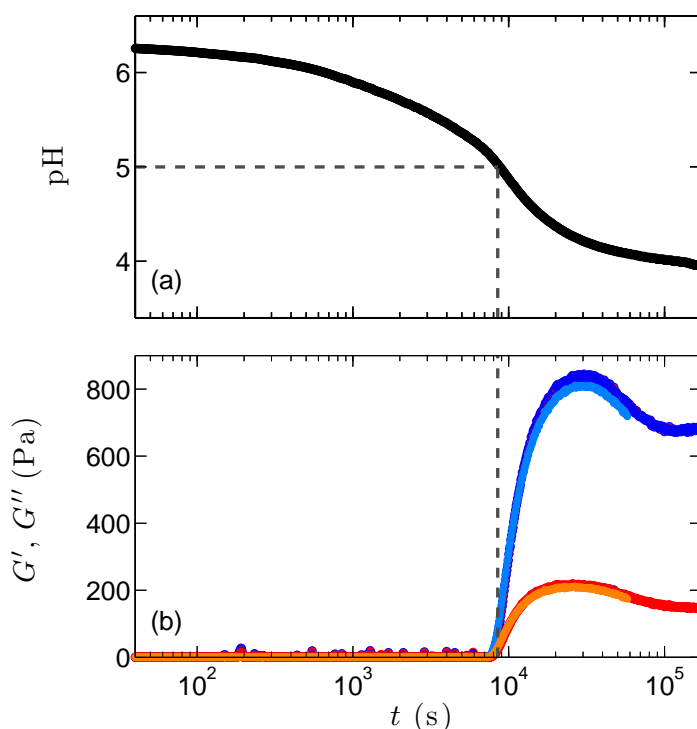


FIGURE 8.2 – **Processus de gélification d'un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL.** (a) Évolution temporelle du pH. (b) Modules viscoélastiques  $G'$  (en bleu, en haut) et  $G''$  (en rouge, en bas) enregistrés en fonction du temps pour une fréquence d'oscillation  $f = 1$  Hz et une amplitude de déformation 0,1% fixés. Les lignes en pointillés indiquent que le système commence à se gélifier lorsque le pH décroît en dessous de 5. Les couleurs plus claires en (b) correspondent à un échantillon sans sphères de polyamides. On montre alors que l'addition d'agents de contraste n'affecte pas de manière significative le processus de gélification et les propriétés viscoélastiques finales du gel.

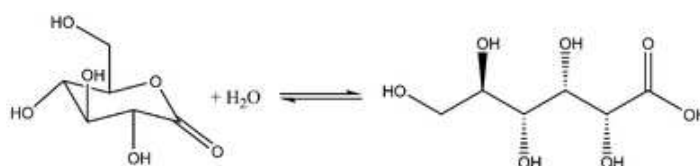


FIGURE 8.3 – **Hydrolyse de la glucono- $\delta$ -lactone en acide gluconique.**

dimensionnel complexe [Fig.8.4(f)]. On peut voir sur les figures 8.4(a), (b) et (c) la coagulation progressive des protéines au cours de la prise du gel. Cette agrégation s'explique par la diminution progressive de l'acidité du milieu engendrée par la GDL. La « chevelure » entourant la paroi extérieure de la micelle [voir Fig.8.4(d)], responsable de la répulsion entre les micelles de caséines, se colle alors sur la surface de la micelles [voir Fig.8.4(e)] et permet aux protéines de s'agréger pour conduire à la formation d'un gel fragile.

On considère alors que le processus de gélification est terminé lorsque les modules élastiques  $G'$  et visqueux  $G''$  ont atteint un plateau où les valeurs de  $G'$  et  $G''$  sont

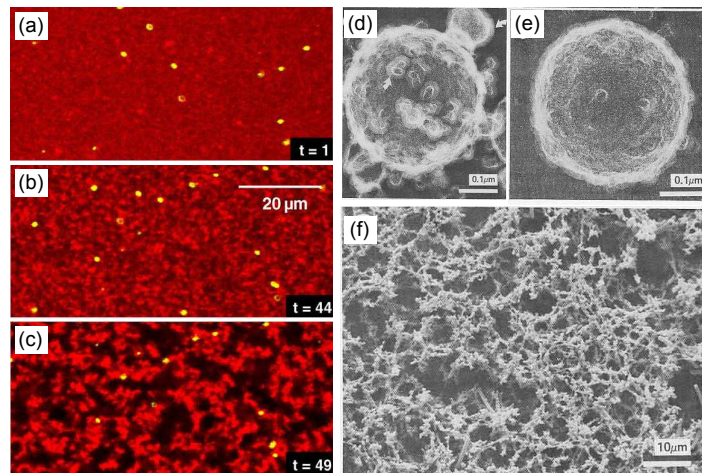


FIGURE 8.4 – **Visualisation microscopique de la prise d'un gel de caséine.** (a) (b) et (c) Évolution temporelle de la structure microscopique obtenue par microscopie confocale à balayage laser (MCBL) d'un gel de caséine (2%) acidifié avec de la GDL contenant des microsphères de carboxylate. Le temps indiqué est en minutes après l'addition de la GDL. Les régions sombres indiquent l'absence de protéine. Les microsphères de carboxylate ( $0,5 \mu\text{m}$ ) sont repérées par les points jaunes (figures tirées de [Moschakis et al., 2010]). (d) et (e) Micelles de caséine visualisées par microscopie électronique à balayage (MEB) présentant (d) une « chevelure » à l'origine de la répulsion entre les protéines et présentant (e) une surface plus lisse qui permet leur agrégation et la formation du gel (figures tirées de [Kalab, 1983]). (f) Visualisation par MEB du réseau tri-dimensionnel d'un gel de protéines (figure tirée de [Kalab, 1983]).

constantes et où  $G' > G''$ . À ces concentrations, la prise dure environ 8 heures. Une contrainte de cisaillement constante est alors appliquée à l'échantillon et la réponse en déformation est enregistrée par le rhéomètre. Pour compléter les informations rhéologiques, des visualisations externes et synchronisées avec le rhéomètre ont été mises en place. Des images optiques du gel sont enregistrées par une webcam standard (Logitech Webcam Pro 9000) et des mesures locales de vitesse et de champ de déplacement dans le plan  $(r, z)$  (correspondant aux directions du gradient de vitesse et de la vortacité) sont réalisées à l'aide de la technique d'imagerie ultrasonore que nous avons détaillé précédemment au chapitre 2. Pour ce faire, avant d'acidifier la solution de caséinate de sodium, on ajoute des agents de contraste acoustique qui servent de traceurs ultrasonores. Ici des sphères de polyamide (Orgasol 2002 ES3 NAT 3, Arkema, diamètre  $30 \mu\text{m}$ , densité 1,02) sont ajoutées à 3% en masse. La figure 8.2(b) montre que l'ajout de ces sphères ne modifie pas le processus de gélification ni les propriétés finales du gel. En effet, les courbes des modules viscoélastiques du gel avec sphères (couleurs foncées) et sans sphères (couleurs claires) se superposent parfaitement. Notons enfin que la rupture du gel de protéines étant irréversible, chaque expérience de fluage demande de préparer auparavant un nouvel échantillon.

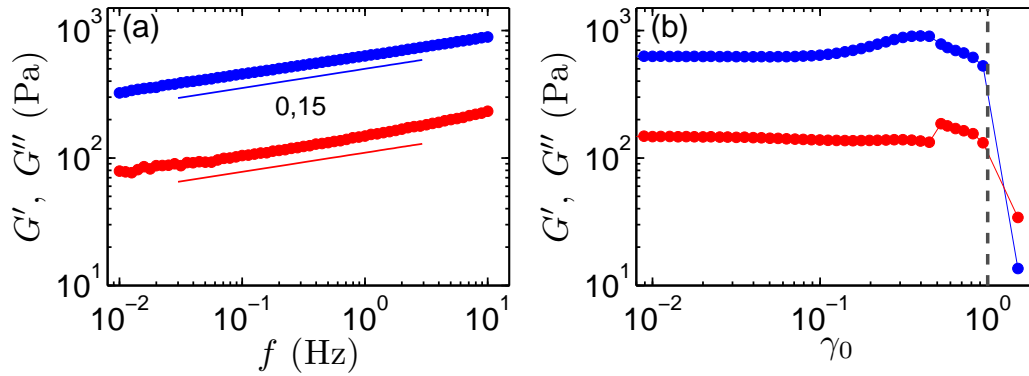


FIGURE 8.5 – **Rhéologie linéaire d'un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL.** (a) Évolution des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence  $f$  pour une amplitude de déformation de 0,1%. Les lignes montrent que les modules suivent une loi de puissance :  $G' \sim G'' \sim f^{0,15}$  (b) Evolution des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  en fonction de la déformation  $\gamma_0$  pour une fréquence d'oscillation  $f = 1$  Hz. La ligne en pointillés gris montre  $\gamma = 1$ .

## 8.2.2 Rhéologie linéaire

Avant de nous concentrer sur les expériences de fluage, nous présentons ici les propriétés de viscoélasticité linéaire du gel. Pour cela, une fois que le processus de gélification est terminé, on applique un cisaillement oscillant et on mesure l'évolution des modules élastique et visqueux en augmentant progressivement la fréquence d'oscillation  $f$  ou l'amplitude de la déformation  $\gamma_0$ .

La figure 8.5(a) illustre le comportement en fréquence de  $G'$  et  $G''$  lorsqu'on applique des oscillations d'amplitude 0,1%. Le gel de caséine présente une rhéologie en loi de puissance :  $G' \sim G'' \sim f^{0,15}$  ce qui correspond à une complaisance  $J(t) \equiv \gamma(t)/\sigma \sim t^{0,15}$  dans le régime de déformation linéaire [Tschoegl, 1989]. À cette amplitude  $\gamma_0 = 0,1\%$ , la déformation du gel est purement réversible.

La figure 8.5(b), illustre quant à elle le comportement de  $G'$  et  $G''$  lorsqu'on augmente progressivement l'amplitude  $\gamma_0$  des oscillations pour une fréquence fixée  $f = 1$  Hz. Cette figure montre une transition solide-fluide soudaine, bien plus rapide que dans le cas du gel de noir de carbone. Le terme de rupture est donc privilégié ici pour décrire cette transition solide-fluide pour un matériau fragile comme le gel de protéines (le terme de fluidification est plutôt utilisé pour le gel de noir de carbone, considéré quant à lui comme un matériau ductile). Cette rupture se produit pour une amplitude de déformation d'environ  $\gamma_0 = 1$  en deçà de laquelle le gel a un comportement solide ( $G' > G''$ ) et au-delà de laquelle le gel est fluidifié et présente un comportement liquide ( $G' < G''$ )<sup>3</sup>. Ce seuil en déformation  $\gamma_0 = 1$  au-delà duquel le gel rompt a été retrouvé dans les expériences de fluage que nous allons à présent décrire en détail.

3. On remarque également un saut de  $G'$  et  $G''$  à  $\gamma_0 = 0,5$  qui pourrait être attribué à un décollement à l'une ou à l'autre des parois et à un relargage d'eau dans l'échantillon.

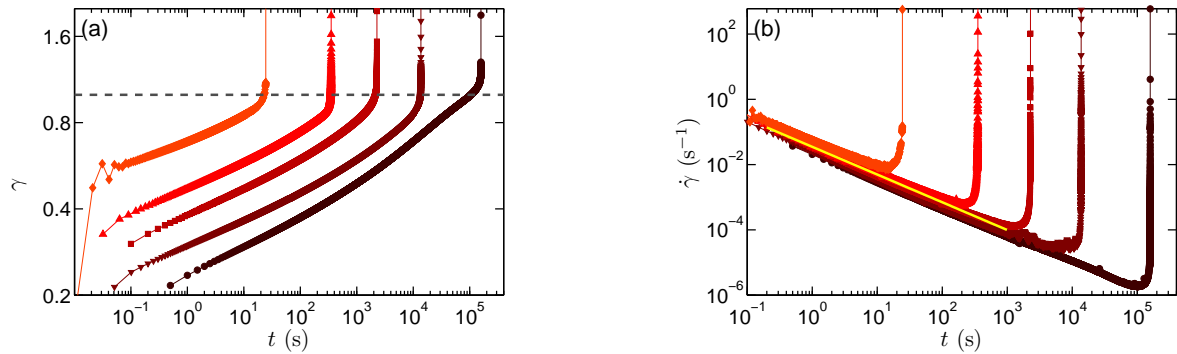


FIGURE 8.6 – Fluage d'Andrade d'un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. (a) Déformation  $\gamma(t)$  et (b) taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  pour des contraintes de cisaillement imposées  $\sigma = 200$  (●), 300 (▼), 400 (■), 550 (▲), et 1000 Pa (◆) de droite à gauche. La taille de l'entrefer est de 1 mm. En (a), la ligne en pointillés gris montre qu'à  $\gamma \simeq 1$  le gel cède. En (b), la courbe jaune montre le comportement en loi de puissance  $\dot{\gamma}(t) \sim t^{-0,85}$ .

### 8.3 Un scénario de rupture robuste

À l'issue des 8 h de prise, l'expérience de fluage peut alors débuter. La figure 8.6(a) montre que lorsqu'on applique une contrainte de cisaillement constante, la déformation globale mesurée par le rhéomètre  $\gamma(t)$  suit une dépendance temporelle robuste caractérisée par trois régimes successifs.  $\gamma(t)$  augmente lentement avec le temps jusqu'à  $\gamma \sim 1$  puis accélère jusqu'à ce qu'enfin le gel casse à un temps  $\tau_f$  bien défini.

Ce scénario reste qualitativement le même pour toute la gamme de contrainte étudiée. Dans le cas de la cellule de Couette d'entrefer 1 mm du rhéomètre MCR, la gamme étudiée est de [150-1000] Pa. La figure 8.6(b) illustre les données de  $\dot{\gamma}(t)$  pour le même jeu de données que pour la figure 8.6(a) sur l'ensemble de l'expérience. Le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  est obtenu en dérivant le signal brut de déformation de la figure 8.6(a). Pour  $0,1 \lesssim t/\tau_f \lesssim 0,9$ ,  $\dot{\gamma}(t)$  est lissé en utilisant une moyenne glissante sur  $\delta t \simeq 0,01\tau_f$  dans le but de retirer le bruit à haute fréquence induit par la dérivée de petits déplacements et conduisant à de très faibles taux de cisaillement. Les mêmes données normalisées par leur valeur minimale  $\dot{\gamma}_{min}$  sont tracées sur la figure 8.9[(a), gauche] en fonction du temps normalisé par le temps de rupture  $\tau_f$  du gel. Toutes les courbes obtenues pour différentes contraintes de cisaillement appliquées se superposent alors en une seule et même courbe et ceci quelque soit  $\sigma$ , ce qui prouve la robustesse de ce scénario.

De plus, la robustesse de ce scénario de rupture du gel a été également mis en évidence à travers des expériences dans des géométries différentes. Premièrement, il ne dépend pas qualitativement de la taille de l'entrefer de la cellule de Couette. Que ce soit avec un entrefer de 1 mm pour la cellule du MCR ou un entrefer de 2 mm pour la cellule de l'ARG2, le gel suit le même comportement. Enfin, le changement de géométrie ne semble pas non plus affecter la succession de ces trois étapes. Deuxièmement, nous avons également observé ce scénario dans une géométrie plan-plan comme le montre la vidéo supplémentaire 19 et la figure 8.7. Cette expérience illustre la rupture d'un gel de caséine de concentration 4% sans sphère de polyamide et acidifié avec 1% de



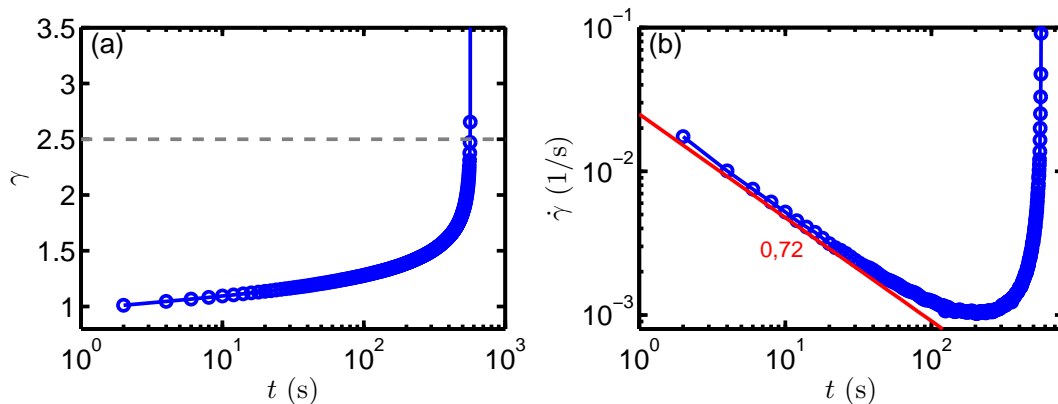


FIGURE 8.7 – **Fluage d’Andrade d’un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL pour une contrainte de cisaillement imposée de  $\sigma = 120$  Pa dans une géométrie plan-plan.** (a) Évolution temporelle de la déformation  $\gamma(t)$ . La ligne et en pointillés gris montre la rupture du gel à  $\gamma = 2,5$ . (b) Évolution temporelle du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$ . La courbe rouge montre le comportement en loi de puissance  $\dot{\gamma}(t) \sim t^{-0,72}$ .

GDL pour une contrainte de cisaillement imposée de  $\sigma = 120$  Pa. Le diamètre du plan est de 50 mm et la taille de l’entrefer est de 1 mm. Les données rhéologiques globales de déformation et de taux de cisaillement sont très similaires à celles mesurées dans une géométrie de Couette. On observe cependant pour cette expérience un exposant de la loi de puissance plus faible pour l’évolution temporelle du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t) \sim t^{-0,72}$ .

## 8.4 Loi de Basquin

L’ensemble des expériences de fluage des figures 8.6(a) et (b), nous permet de déterminer précisément le temps de rupture  $\tau_f$  du gel de caséine. La figure 8.8 répertorie les mesures de  $\tau_f$  pour la gamme de contrainte de cisaillement étudiée [150-1000] Pa et réalisées dans une cellule de Couette d’entrefer 1 mm. Comme on peut le voir sur la figure 8.8(a), le temps de rupture  $\tau_f$  décroît nettement avec  $\sigma$  et suit une loi de puissance de la forme :

$$\tau_f = A\sigma^{-\beta} \quad (8.1)$$

où  $\beta = 5,45 \pm 0,05$  et  $A = 40,6 \pm 0,5 \text{ s.Pa}^\beta$  sont les paramètres de l’ajustement. Les figures 8.8(b), 8.8(c) et 8.8(d) nous permettent de vérifier ici que l’évolution de  $\tau_f$  ne peut être modélisé ni par un comportement en  $\tau_f \sim \exp(-\sigma/\sigma_f)$ , caractéristique des gels colloïdaux attractifs [Gibaudo et al., 2010; Gopalakrishnan et Zukoski, 2007] étudiés précédemment, ni par des comportements en  $\tau_f \sim \exp(\sigma_f/\sigma)$  ou en  $\tau_f \sim \exp(\sigma_f/\sigma^2)$ , représentatifs des modèles de Taylor et de Pomeau [Vanel et al., 2009] respectivement où le paramètre  $\sigma_f$  est ici une contrainte caractéristique du matériau.

Ce résultat clef rappelle fortement la *loi de fatigue de Basquin* [Basquin, 1910] observée pour une grande variété de matériaux solides soumis à des déformations cycliques comme l’asphalte [Kun et al., 2007, 2008], le cuivre ou encore l’acier [Kohout, 2000].

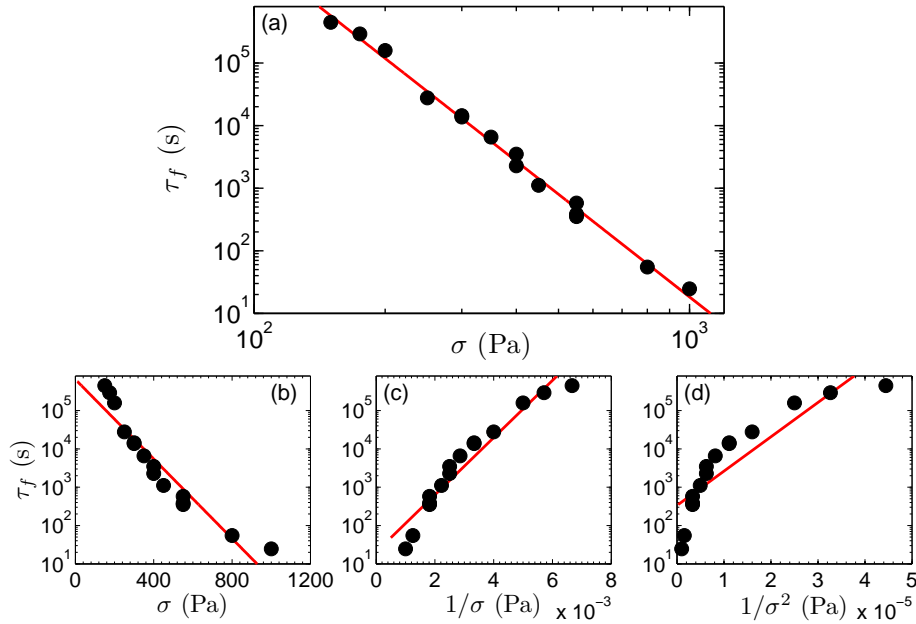


FIGURE 8.8 – Loi de fatigue de Basquin d’un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. (a) Évolution du temps de rupture  $\tau_f$  en fonction de la contrainte appliquée  $\sigma$ . La ligne rouge est le meilleur ajustement en loi de puissance  $\tau_f = A\sigma^{-\beta}$  avec  $\beta = 5,45 \pm 0,05$  et  $A = 40,6 \pm 0,5 \text{ s.Pa}^\beta$ . (b) (c) et (d) montrent respectivement que le comportement de  $\tau_f$  ne peut être modélisé ni par  $\tau_f \sim \exp(-\sigma/\sigma_f)$ , ni par  $\tau_f \sim \exp(\sigma_f/\sigma)$  et encore moins par  $\tau_f \sim \exp(\sigma_f/\sigma^2)$ .

## 8.5 Définition des trois régimes de fluage

Le temps de rupture  $\tau_f$  déterminé pour chacune des expériences nous permet de superposer toutes les données en taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  sur une seule et même courbe représentée sur la figure 8.9[(a), à gauche] en traçant le taux de cisaillement divisé par le taux de cisaillement minimum  $\dot{\gamma}_{min}$  en fonction du temps  $t$  divisé par  $\tau_f$ , soit  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}_{min}$  vs  $t/\tau_f$ . Le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_{min}$  est ici défini comme le minimum de la courbe  $\dot{\gamma}(t)$  atteint au temps  $\tau_{min}$  :  $\dot{\gamma}(\tau_{min}) = \dot{\gamma}_{min}$  [voir Fig.8.6(b)]. Cette représentation des données va nous permettre de définir proprement les trois régimes de fluage observés.

### 8.5.1 Régime de fluage primaire et fluage d’Andrade

Pour  $t \lesssim 0,1\tau_f$ , le taux de cisaillement décroît en loi de puissance sur environ quatre décades :

$$\dot{\gamma} \sim t^{-\alpha} \quad (8.2)$$

avec  $\alpha = 0,85 \pm 0,02$ . Cette loi correspond au *fluage primaire* observé dans les solides que l’on nomme « fluage d’Andrade » [Andrade, 1910; Miguel et al., 2002; Nechad et al., 2005]. Cette loi suivie par l’échantillon peut être entièrement expliquée par la rhéologie linéaire du gel. En effet, comme nous l’avons vu sur la figure 8.5(a), notre gel de caséine présente une rhéologie linéaire en loi de puissance :  $G'(f) \sim G''(f) \sim f^{0,15}$ . Cela correspond à une complaisance  $J(t) \equiv \gamma(t)/\sigma \sim t^{0,15}$  et qui entraîne par dérivation, une

évolution du taux de cisaillement également en loi de puissance :  $\dot{\gamma} \sim t^{-0,85}$ . Ceci suggère donc que le fluage primaire est réversible et qu'aucun événements plastiques notables apparaît durant cette évolution. L'homogénéité macroscopique et la réponse linéaire sont confirmées, du moins avec les résolutions spatiales ( $\sim 10 \mu\text{m}$ ) et temporelles ( $\sim 1 \text{ s}$ ) disponibles, par des visualisations directes et de l'imagerie ultrasonore. Sur la figure 8.10(a), on peut voir que pour un temps  $t = 0,02\tau_f$ , les images optiques enregistrées par la webcam (à gauche) ne présentent aucun signe de fissures ou de fractures macroscopiques, tandis que le champ de vitesse mesuré dans le plan ( $r$ - $z$ ) par la technique d'imagerie ultrasonore ne présente aucune dépendance significative le long de la direction verticale  $z$ . De plus, les figures 8.12(a) et (b) montrent que le champ de vitesse et le champ de déplacement moyennés selon la direction verticale  $z$  décroissent linéairement avec la position radiale  $r$  dans l'entrefer sans glissement aux parois en plexiglas de la cellule de Couette et ceci durant tout le régime primaire du fluage.

### 8.5.2 Régime de fluage secondaire et relation de Monkman-Grant

Pour  $0,1 \lesssim t/\tau_f \lesssim 0,9$ , le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  s'écarte du comportement en loi de puissance [voir Fig.8.9(b), à gauche] et passe par une valeur minimale au temps :

$$\tau_{min} = (0,56 \pm 0,04)\tau_f. \quad (8.3)$$

La relation entre  $\tau_{min}$  et  $\tau_f$  est représentée sur la figure 8.11(a). Le fait que  $\tau_{min}$  soit indépendant de la contrainte de fluage appliquée  $\sigma$  a déjà été décrit dans de nombreux systèmes. Sundararajan [1989] l'a observé dans des métaux, Nechad et al. [2005] dans des matériaux solides composites tandis que Kovacs et al. [2008] et Jagla [2011] l'ont étudié dans leurs modèles de faisceaux de fibres. Cette linéarité entre  $\tau_{min}$  et  $\tau_f$  connue aussi sous le nom de *relation de Monkman-Grant* [Monkman et Grant, 1956] est bien utile pour prévoir la durée de vie en fluage du matériau et notamment de prédire le temps de rupture à partir d'un temps intermédiaire lors de la réponse du gel. Durant ce régime de fluage secondaire, des fissures régulièrement espacées nucléent à partir du haut et du bas de la cellule de Taylor-Couette et croissent perpendiculairement à la contrainte appliquée (voir Fig.8.10(b) et la vidéo supplémentaire 20)<sup>4</sup>. Ces fractures macroscopiques sont envahies par de l'eau expulsée de la matrice de gel environnante. Bien que les fractures ne soient pas encore entrées dans la région d'imagerie des ultrasons, on remarque Fig.8.10[(b) à gauche] que les images de cartographie du champ de vitesse deviennent hétérogènes le long de la direction  $z$  et présente également des fluctuations intermittentes [voir Figure 8.12(c) et (d)]. Des fluctuations peut être également observées sur le signal de cisaillement global [voir Fig.8.9(b) à gauche] où les symboles ( $\blacktriangledown$ ) correspondent à la même contrainte de cisaillement appliquée. De plus, la figure 8.9(b)(à gauche) indiquent que ces fluctuations semblent dépendre de la contrainte de cisaillement et sont également peu reproductibles. L'origine de cette intermittence peut

4. Notons ici que la direction de croissance des fissures reste toujours celle de la vorticit . En effet, alors que dans le cas de la g om trie plan-plan les fissures croissent selon la direction radiale  $r$  (voir vid o suppl mentaire 19), dans le cas de la g om trie de Couette les fissures croissent selon la direction verticale  $z$ .

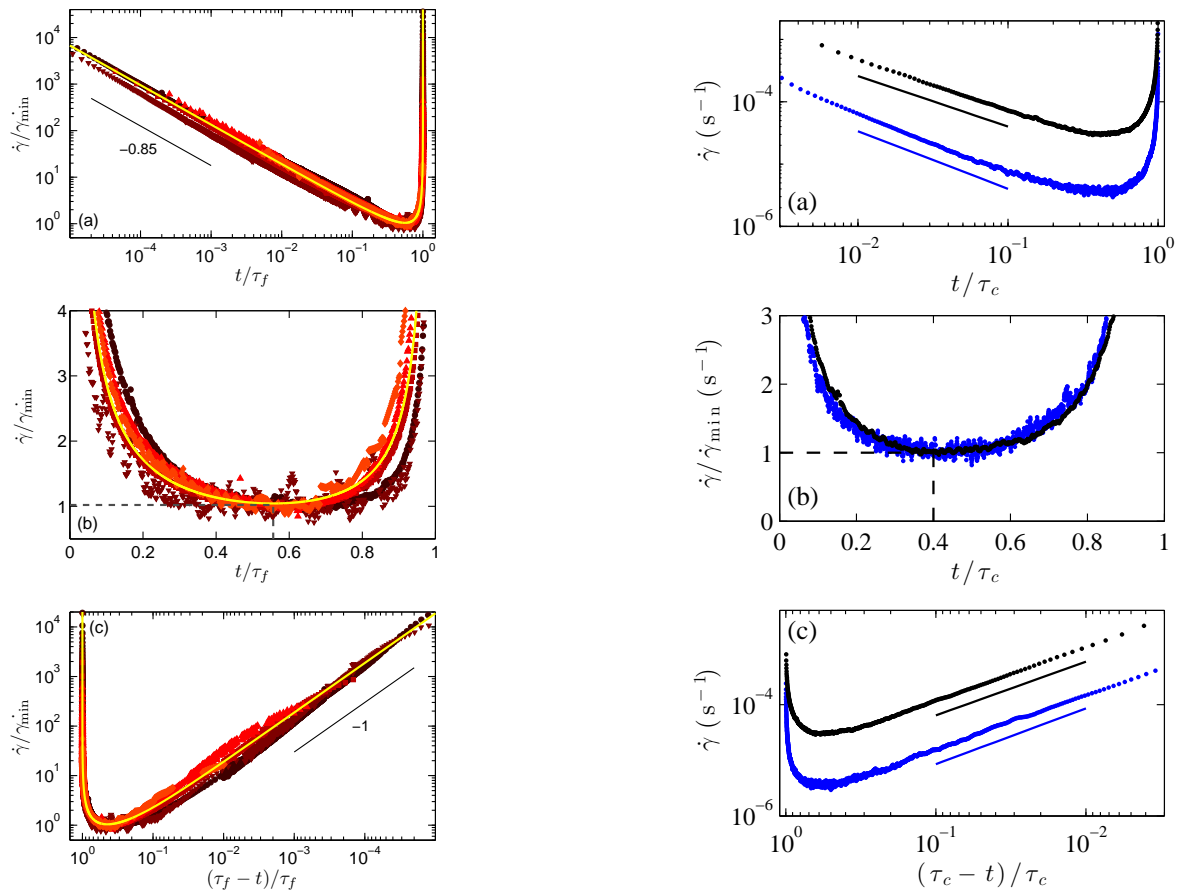


FIGURE 8.9 – Représentation des trois régimes de fluage d’un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL et comparaison avec le fluage d’un gel de noir de carbone de concentration 8% (en noir) et 10% (en bleu). À gauche : taux de cisaillement normalisé  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}_{min}$  correspondant aux données de la figure 8.6 et tracé de manière à mettre en évidence les trois régimes successifs.  $\dot{\gamma}_{min}$  correspond au taux de cisaillement minimum atteint en  $\tau_{min}$  (voir texte et Fig.8.6(b)). La ligne jaune montre la courbe maîtresse déduite de l’ajustement de  $\dot{\gamma}$  par l’équation (8.5) avec  $\alpha = 0,85$ , donnant  $\lambda = 0,378 \pm 0,002$  et  $\mu = 0,187 \pm 0,002$ . (a) Fluage primaire :  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}_{min}$  vs  $\tau/\tau_f$  en échelles logarithmiques. (b) Fluage secondaire :  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}_{min}$  vs  $\tau/\tau_f$  en échelles linéaires. La ligne en pointillés gris montre le minimum de l’équation 8.5 atteint pour  $\tau_{min} = 0,556\tau_f$ . (c) Fluage tertiaire :  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}_{min}$  vs  $(\tau_f - t)/\tau_f$  en échelles logarithmiques avec un axe horizontal inversé. À droite : figure tirée de Grenard et al. [2014] illustrant les trois régimes de fluage observés sur un gel de noir de carbone.

éventuellement provenir de la croissance irrégulière de fissures microscopiques situées à la pointe de la fracture principale. La figure 8.12(d) compare la déviation standard  $\delta_z v(t)$  de  $\langle v(r, z, t) \rangle_r$  prise sur la direction verticale  $z$  (en noir) avec la déviation standard  $\delta_r v(t)$  de  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  calculée sur la direction radiale  $r$  (en rouge). Les fluctuations sont alors bien plus importantes dans la direction verticale  $z$ . Etant donné que cette hétérogénéité est beaucoup plus faible dans la direction radiale  $r$ , soit ces « précurseurs » s’étendent sur la totalité de l’entrefer, c’est-à-dire sur une taille de 2 mm, soit ils induisent des déplacements à longues portées. Dans tous les cas, de telles caractéris-

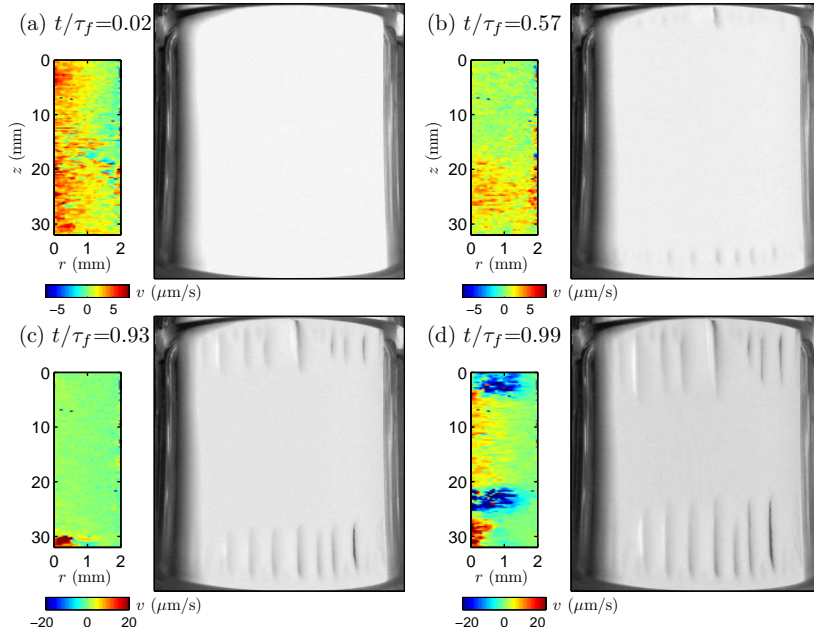


FIGURE 8.10 – Comparaison entre visualisation directe et imagerie ultrasonore de la rupture d'un gel de caséine de concentration 4% ensencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. Images ultrasonore (à gauche) et images extérieures de la cellule de Couette réalisées à l'aide d'une webcam standard enregistrées simultanément à différents instants dans les régimes de fluage primaire [(a)  $t/\tau_f = 0,02$ ], secondaire [(b)  $t/\tau_f = 0,57 \simeq \tau_{min}/\tau_f$ ] et tertiaire [(c)  $t/\tau_f = 0,93$  et (d)  $0,99$ ]. Les images ultrasonores montrent le champ de vitesse  $v(r, z, t)$  calculé en moyennant sur 4 s et codé en utilisant une échelle de niveaux de couleurs linéaires située en dessous des images. Leur position sur la figure reflète la position réelle de la sonde ultrasonore le long de la direction  $z$ . Dans cette expérience la taille de l'entrefer est de 2 mm et  $r$  représente la distance radiale à partir du cylindre intérieur en rotation. Dans cette expérience la contrainte de cisaillement appliquée est de  $\sigma = 300$  Pa. Voir aussi la vidéo supplémentaire 20.

tiques bruitées sont typiques de la propagation lente de fractures dans les solides [Vanel et al., 2009; Kun et al., 2007].

### 8.5.3 Régime de fluage tertiaire et croissance finale des fractures

Dans le régime tertiaire, pour  $t \gtrsim 0,9\tau_f$ , le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  augmente de plus de quatre ordres de grandeur et diverge comme  $(\tau_f - t)^{-1}$ . La figure 8.9[(c) à gauche] représente  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}(t)_{min}$  en échelles logarithmiques et avec un axe horizontal inversé de façon à mettre en évidence le comportement au voisinage de  $\tau_f$ . Cette singularité à un temps bien déterminé correspond à la croissance finale des fractures le long de la direction de la vorticit  (z dans le cas de la cellule de Couette). Cette croissance est de plus en plus rapide et au temps de rupture  $\tau_f$ , deux fractures se rejoignent vers le milieu de la cellule de Taylor-Couette [voir Fig.8.10(c) et (d)]. La carte du champ de vitesse mesurée par l'imagerie ultrasonore est directement corr el e   la croissance des fissures et r ev le la structure complexe du champ de d eplacement au niveau de la pointe de la

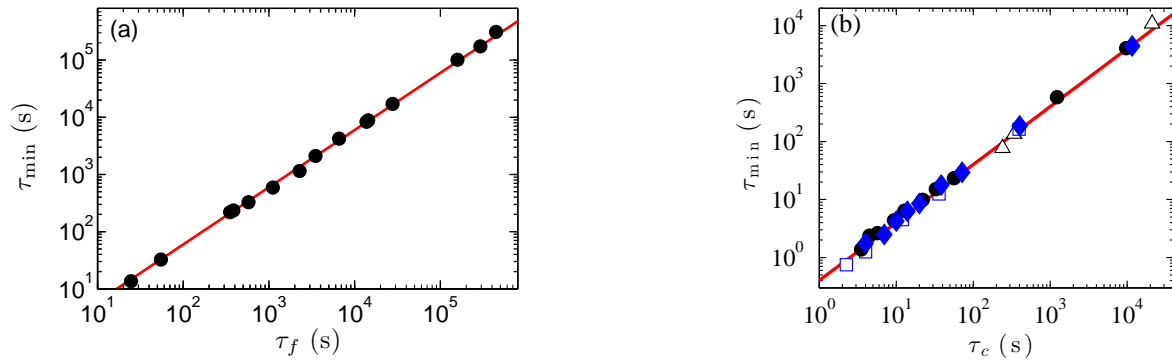


FIGURE 8.11 – Evolution du temps  $\tau_{min}$  d'un gel de caséine et comparaison avec un gel de noir de carbone. (a)  $\tau_{min}$  vs  $\tau_f$  pour un gel de caséine de concentration 4% ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. Les données correspondent à celles de la figure 8.6. La ligne rouge montre l'ajustement linéaire :  $\tau_{min} = 0,56\tau_f$ . (b) Figure tirée de Grenard et al. [2014] montrant l'évolution de  $\tau_{min}$  en fonction de la durée de fluage  $\tau_c$  pour différentes concentration de CB :  $C = 4$  ( $\Delta$ ), 6 ( $\square$ ), 8 ( $\bullet$ ) et 10% ( $\blacklozenge$ ). La ligne rouge montre l'ajustement linéaire :  $\tau_{min} = 0,4\tau_c$ .

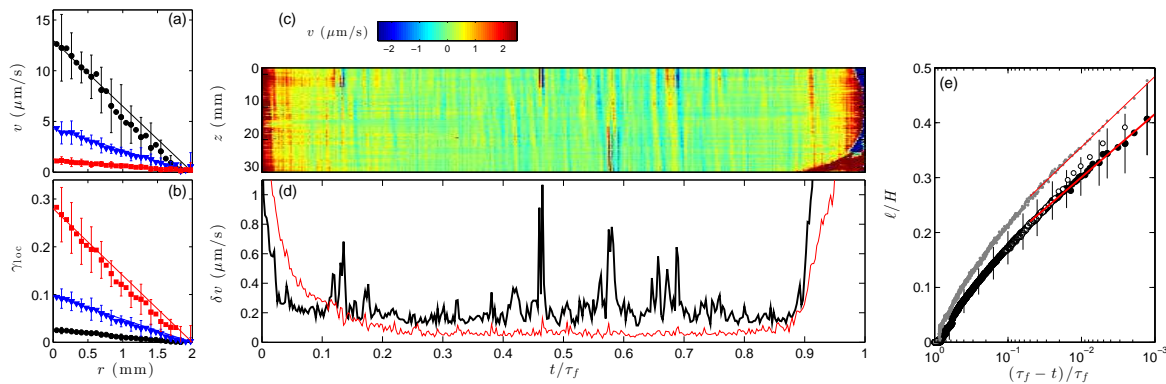


FIGURE 8.12 – D'une déformation homogène du gel à la croissance des fractures. (a) Mesures locales de vitesses  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  et (b) du champ de déplacement  $\langle \gamma_{loc}(r, z, t) \rangle_z$  moyennées sur la direction verticale  $z$  à différents temps durant le fluage primaire :  $t/\tau_f = 1,9 \cdot 10^{-3}$  ( $\bullet$ ),  $1,7 \cdot 10^{-2}$  ( $\blacktriangledown$ ), et  $0,15$  ( $\blacksquare$ ). Les lignes représentent les profils linéaires. (c) Diagramme spatio-temporel de la vitesse locale  $\langle v(r, z, t) \rangle_r$  moyennée sur la direction radiale  $r$  et tracé en échelle de couleur linéaire en fonction de  $z$  et de  $t/\tau_f$ . (d) Déviation standard  $\delta_z v(t)$  de  $\langle v(r, z, t) \rangle_r$  calculée sur la direction verticale (en noir) en fonction de  $t/\tau_f$  et comparée avec la déviation standard  $\delta_r v(t)$  de  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  calculée sur la direction radiale  $r$  (en rouge). (e) Longueur des fractures  $\ell(t)$  vs  $(\tau_f - t)/\tau_f$  obtenue à partir de la visualisation directe ( $\bullet$ , moyenne sur 6 fractures différentes, les barres d'erreurs montrent la déviation standard) et à partir de l'imagerie ultrasonore ( $\circ$ ) et normalisée par la hauteur  $H$  de la cellule de Couette. Les points gris montre la visualisation des données pour la plus longue fracture qui conduit à la rupture de l'échantillon à  $\tau_f$ . Les lignes rouges sont les meilleures interpolations :  $\ell(t) = a + b \log(1 - t/\tau_f)$  des données de visualisation. Les expériences présentées dans cette figure sont les mêmes que dans Fig.8.10 et dans la vidéo supplémentaire 20.

fracture. En particulier, la figure 8.10(d) suggère que la fracture est initiée au niveau du cylindre intérieur en rotation en  $r = 0$  et la présence de vitesses élevées, positives et négatives, à proximité de la pointe de la fissure, indique une forte compression et un recul du gel de protéines lors de la propagation de la fracture. L'évolution de la longueur des fractures  $\ell(t)$  peut être déterminée à la fois par visualisation directe mais également par imagerie ultrasonore. La figure 8.12(d) montre que  $\ell(t)$  se comporte comme :

$$\ell(t) \sim \log(\tau_f - t). \quad (8.4)$$

En d'autres termes, on a  $d\ell/dt \sim \dot{\gamma}(t) \sim (\tau_f - t)^{-1}$  ce qui indique que le taux de cisaillement global est lié à l'ouverture des fractures.

Finalement, insistons sur le fait que le fluage d'Andrade (qui semble ici être réversible) et la croissance des fissures (qui elle est irréversible) sont deux processus physiques qui permettent de rendre compte de la réponse rhéologique globale fournie par le rhéomètre. En effet, comme le montre l'ajustement (ligne jaune) de la figure 8.9 de gauche, la courbe maîtresse  $\dot{\gamma}(t)/\dot{\gamma}_{min}$  en fonction de  $t/\tau_{min}$  est parfaitement interpolée par la relation :

$$\frac{\dot{\gamma}(t)}{\dot{\gamma}_{min}} = \lambda \left( \frac{t}{\tau_f} \right)^{-\alpha} + \frac{\mu}{1 - t/\tau_f}, \quad (8.5)$$

avec seulement deux paramètres ajustables,  $\lambda$  et  $\mu$ , une fois que  $\alpha = 0,85$  est fixé. Cette remarquable superposition de tous les jeux de données en une seule et même équation nous permet d'interpréter simplement le régime de fluage secondaire comme un régime intermédiaire entre le fluage et la croissance des fractures. En effet, cette courbe maîtresse obtenue par la superposition des ajustements du régime de fluage primaire,  $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_{min} = (\tau/\tau_f)^{-\alpha}$ , et du régime de fluage tertiaire,  $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_{min} = (\tau_f - t)/\tau_f$ , nous permet d'interpoler parfaitement le régime de fluage secondaire.

## 8.6 Comparaison avec le fluage du CB

Parmi toutes les comparaisons possibles sur le fluage de divers matériaux, nous avons choisi de nous focaliser en particulier sur le gel de noir de carbone déjà évoqué dans le chapitre 7 pour une étude en contrainte oscillante. La sollicitation à contrainte constante avait déjà été étudiée par Vincent Grenard et a fait l'objet d'une publication récente [Grenard et al., 2014]. Les résultats sont très similaires à ceux obtenus avec le gel de caséine et sont présentés dans les figures 8.9 (à droite) et 8.11(b). Comme nous l'avons déjà mentionné dans le chapitre précédente, le fluage d'un gel de noir de carbone met en jeu deux échelles de temps caractéristiques  $\tau_c$  et  $\tau_f$ . Le temps  $\tau_c$  correspond à la rupture du gel à la paroi mobile et se comporte comme :  $\tau \sim (\sigma - \sigma_c)^{-\beta}$  avec  $\beta = 2,2 - 3,2$  suivant les concentrations étudiées. Un tel comportement en loi de puissance décroissante nous fait directement penser à la loi de Basquin obtenue pour le temps de rupture du gel de protéines et prédite par les modèles de faisceaux de fibres qui suggèrent des exposants plus faibles  $\beta = 0,5 - 1,25$  [Jagla, 2011; Nechad et al., 2005]. D'autre part, l'étude détaillée de la réponse en taux de cisaillement pour un temps  $t < \tau_c$  pour deux gels de noir de carbone de concentration 8 et 10%, met en évidence les trois régimes de fluage déjà obtenus avec le gel de protéines. Jusqu'à  $t \simeq 0,2\tau_c$ , durant le régime primaire, le comportement est régi par un fluage d'Andrade

où le taux de cisaillement suit une loi de puissance d'exposant  $-0,81$  et  $-0,93$  dans ces deux cas particuliers [Fig.8.9 (a), à droite]. Puis, pour  $t \gtrsim 0,2\tau_c$ , durant le régime secondaire, le taux de cisaillement dévie progressivement de sa loi de puissance pour atteindre un minimum  $\dot{\gamma}_{min}$  à  $\tau_{min} \simeq 0,4\tau_c$ . L'évolution des taux de cisaillement pour ces deux concentrations se superpose alors lorsqu'on trace  $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_{min}$  en fonction de  $t/\tau_c$  [Fig.8.9 (b), à droite]. Cette évolution de  $\tau_{min}$  avec  $\tau_c$  a été confirmée par l'ensemble des expériences de fluage faites pour diverses contraintes et concentrations. La figure 8.11(b) montre en effet que  $\tau_{min}$  est directement proportionnel au temps  $\tau_c$  et que le coefficient de proportionnalité de  $0,4$  semble être indépendant de la concentration et de la contrainte de cisaillement appliquée. Finalement, durant le régime tertiaire, le taux de cisaillement augmente selon une loi de puissance en  $(\tau_c - t)$  avec un exposant très proche de  $-1$  ( $0,97$  et  $-1,0$  pour les concentrations de  $8$  et  $10\%$  respectivement) avant de céder à  $t = \tau_c$  aux parois de la cellule de Taylor-Couette.

## 8.7 Résumé et discussion

Résumons maintenant les principaux résultats obtenus lors de l'étude du fluage d'un gel de caséine. Premièrement, nous avons montré que le gel de caséine présente un scénario de rupture remarquable, similaire au comportement des solides fragiles et caractérisé par trois régimes successifs de fluage. Ici, le fluage primaire et son comportement en loi de puissance [ $\dot{\gamma}(t) \sim t^{-\alpha}$  avec  $\alpha = 0,85 \pm 0,02$ ] peuvent être déduits directement de la rhéologie linéaire du gel et les mesures locales (ultrasonore et optique) montrent une déformation en volume homogène à des échelles supérieures à  $10 \mu\text{m}$ . Un tel lien entre fluage et viscoélasticité a aussi été observé dans d'autres gels de biopolymères avec une rhéologie en loi de puissance [Gobeaux et al., 2010; Jaishankar et McKinley, 2013], mais également dans des verres colloïdaux de sphères dures [Siebenbürger et al., 2012]. Par conséquent, les gels de protéines semblent rester élastiques et quasi-réversibles tout au long du fluage primaire, ce qui est caractéristique des matériaux fragiles. À l'inverse, le fluage primaire dans les matériaux ductiles est irréversible et peut être attribué aux réarrangements de dislocations dans le cas de matériaux cristallins [Miguel et al., 2002] ou à des réarrangements plastiques localisés dans les matériaux amorphes [Rosti et al., 2010]<sup>5</sup>.

La croissance logarithmique des fractures dans le régime de fluage tertiaire constitue notre second résultat important. Une telle évolution est aussi fréquemment décrite dans des matériaux solides désordonnés qui présentent également une rupture fragile. Elle est alors interprétée dans le cadre des modèles de Griffith basés sur des barrières d'énergie locales ou globales [Vanel et al., 2009]. Cependant ces approches prédisent toutes une relation exponentielle pour  $\tau_f(\sigma)$  alors que nos données sont le mieux ajustées par une loi de puissance décroissante  $\tau_f \sim \sigma^{-\beta}$  avec  $\beta = 5,45 \pm 0,05$ . Ce dernier résultat suggère que la croissance des fissures dans le cas de notre solide mou n'est pas due à un processus thermiquement activé. Cette loi de puissance rappelle fortement la loi de fatigue de Basquin trouvée pour une grande variété de matériaux soumis à des déformations

5. Notons ici que les réarrangements locaux à des échelles inférieures à  $10 \mu\text{m}$  ne sont pas exclus dans notre gel de protéines. Il nous est simplement impossible de le vérifier à cause de la résolution spatiale limitée de la technique d'imagerie ultrasonore.



cycliques [Kun et al., 2007, 2008], [Basquin, 1910] ou encore [Kohout, 2000]. La loi de Basquin a également été récemment prédite par les modèles de faisceaux de fibres qui combinent des fibres élastiques avec des déformations locales et qui prennent en compte l'accumulation de l'endommagement [Kun et al., 2007; Halasz et al., 2012]. Plus généralement, les modèles de faisceaux de fibres sous une charge de compression ou d'élongation prédisent trois régimes de fluage successifs exactement semblables à la figure 8.9 de gauche avec une relation de proportionnalité similaire entre  $\tau_{min}$  et  $\tau_f$  (Fig.8.11(a)) ainsi qu'une singularité à un temps fini [Nechad et al., 2005; Jagla, 2011]. Tout ceci met en évidence la pertinence du modèle de faisceaux de fibres dans le contexte du fluage d'un gel de protéines dont la microstructure semble en effet être formée de brins [Kalab, 1983; Roefs et al., 1990]. Il serait donc intéressant d'étudier ces modèles dans des géométries de cisaillement pour vérifier s'ils sont en mesure de prédire la croissance des fractures observée ici.

# Chapitre 9

## Bilan de la partie III

Pour conclure sur cette partie, le tableau ci-dessous compare la réponse de trois matériaux lorsqu'on leur applique une contrainte constante. Dans ce tableau, nous avons choisi de mettre en parallèle un microgel de carbopol, un gel de noir de carbone et un gel de protéines. Alors que pour le gel de noir de carbone et le gel de protéines le scénario de fluage en trois étapes a été clairement défini, un travail similaire pourrait être effectué sur le microgel de carbopol avec des conditions aux bords rugueuses. En effet, on pourrait définir également un fluage secondaire avec un temps  $\tau_{min}$  correspondant au minimum atteint par le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_{min}$ , et un temps  $\tau_c$  pour lequel le microgel se met à glisser aux parois. Cependant, le régime tertiaire ne peut être dans ce cas défini car à l'inverse du gel de noir de carbone et du gel de protéines, il n'existe pas ici de divergence en  $\tau_c$ . De plus, ce parallèle entre le carbopol ou le gel de noir de carbone et le gel de protéines se limite à ces trois premières étapes car d'un côté en  $\tau_c$  les fluides à seuil se mettent à couler et il existe une contrainte seuil  $\sigma_c$  et de l'autre en  $\tau_f$  le gel de protéines casse complètement et la loi de Basquin suivie par le temps de fluidification ne présente pas de contrainte seuil. La fluidification totale des fluides à seuil se fait dans un deuxième temps en passant par une fluidification hétérogène où à  $\tau_f$  on considère l'échantillon totalement fluidifié. Dans le cas du microgel de carbopol, la loi suivie par  $\tau_f$  est également une loi de puissance décroissante de type Basquin mais en  $(\sigma - \sigma_c)$ . En effet, contrairement au gel de protéines, le carbopol présente une contrainte seuil. Cependant, ici l'interprétation microscopique n'est pas la même. Alors que pour le gel de protéines, la loi de Basquin se comprend comme des ressorts qui cassent de façon irréversible au sein d'une microstructure qui forme un réseau de fibres, dans le cas du microgel de carbopol on considère plutôt des assemblées de boules molles qui peuvent glisser les unes contre les autres et ceci sans fracture macroscopique apparente. Enfin le temps de fluidification du gel de noir de carbone  $\tau_f$  évolue lui comme une exponentielle décroissante. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 7.6.2, l'interprétation microscopique réside sur une compétition entre rupture et cicatrisation de liens microscopiques qui relie deux brins au sein du gel colloïdal. Cette différence est fondamentale car dans le gel de protéines, la rupture d'une fibre est irréversible.

Notons pour finir que ces résultats sont rassemblés dans une publication soumise à Physical Review Letters [Leocmach et al., 2014]. Ils ont été obtenus en collaboration avec Thibaut DIVOUX (post-doctorant jusqu'en décembre 2012) et Mathieu LEOCMACH (post-doctorant depuis septembre 2012).

Solution	Carbopol	Gel de noir de carbone	Gel de protéine
Référence	Divoux et al. [2011a]	Grenard et al. [2014]	Leocmach et al. [2014]
Sollicitation	Fluage	Fluage	Fluage
Concentration	$C = 0,5 - 3\%$	$C = 4 - 10\%$	$C_{cas} = 4\%$ et $C_{GDL} = 1\%$
Géométrie	$d = 1,1$ mm	$d = 1$ mm	$d = 1$ et $2$ mm
Parois	Rugueuses	Rugueuses	Lisses
Scénario	I) Pour $t \lesssim 0,1\tau_c$ Fluage primaire : Andrade Andrade : $\dot{\gamma} \sim t^{-\alpha}$ $\alpha \simeq 0,67$	I) Pour $t \lesssim 0,1\tau_c$ Fluage primaire : Andrade Andrade : $\dot{\gamma} \sim (t/\tau_c)^{-\alpha}$ $\alpha = 0,8 - 0,9$	I) Pour $t \lesssim 0,1\tau_f$ Fluage primaire : Andrade Andrade : $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_{min} \sim (t/\tau_f)^{-\alpha}$ $\alpha = 0,85$
	II) Pour $0,1\tau_c \lesssim t \lesssim 0,9\tau_c$ : Fluage secondaire Monkman-Grant ?	II) Pour $0,1\tau_c \lesssim t \lesssim 0,9\tau_c$ : Fluage secondaire Monkman-Grant : $\tau_{min} = 0,4\tau_c$	II) Pour $0,1\tau_f \lesssim t \lesssim 0,9\tau_f$ : Fluage secondaire Monkman-Grant : $\tau_{min} = 0,56\tau_f$
	III) Pour $0,9\tau_c \lesssim t \lesssim \tau_c$ : Pas de divergence réelle À $t = \tau_c$ Fluidification aux parois  Basquin ?	III) Pour $0,9\tau_c \lesssim t \lesssim \tau_c$ Fluage tertiaire À $t = \tau_c$ Fluidification aux parois  Basquin : $\tau_c \sim (\sigma - \sigma_c)^{-\beta}$ $\beta = 2,2 - 3,2$ , $\sigma_c = 1,7 - 53,5$ Pa	III) Pour $0,9\tau_f \lesssim t \lesssim \tau_f$ Fluage tertiaire À $t = \tau_f$ : Rupture irréversible par nucléation et croissance de fractures macroscopiques Basquin : $\tau_f \sim \sigma^{-\beta}$ $\beta = 5,5$ , pas de $\sigma_c$
	IV) Pour $\tau_c \lesssim t \lesssim \tau_f$ : Glissement puis fluidification hétérogène (TSB) À $t = \tau_f$ : Fluidification totale et réversible $\tau_f \sim (\sigma - \sigma_y)^{-\beta}$ $\beta = 3,4 - 8,0$	IV) Pour $\tau_c \lesssim t \lesssim \tau_f$ : Glissement puis fluidification hétérogène À $t = \tau_f$ : Fluidification totale et réversible $\tau_f \sim \exp(-\sigma/\sigma_0)$ $\sigma_0 = 2,0 - 30,4$ Pa	

# Conclusions et perspectives



Au cours de ces travaux de thèse, une technique d'imagerie ultrasonore à deux dimensions a été mise en place. Synchronisée avec les mesures rhéologiques en d'une cellule de Taylor-Couette, elle nous a permis d'étudier les propriétés d'écoulement ou de rupture de divers fluides complexes.

Tout d'abord cette technique échographique a été calibrée sur un fluide newtonien bien connu : l'eau. Nous avons retrouvé certains résultats classiques sur l'instabilité inertielle de Taylor-Couette. Nous nous sommes focalisés notamment sur la transition de l'écoulement laminaire vers un écoulement présentant des rouleaux, stables et symétriques, caractéristiques de la première instabilité de Taylor. Nous avons alors vérifié que cette transition était une bifurcation de type fourche supercritique grâce aux mesures du champ de vitesse. Le paramètre d'ordre est alors la déviation à l'écoulement laminaire de base purement azimutal. La combinaison des mesures de vélocimétrie ultrasonore dans un sens de rotation et dans l'autre nous a permis de remonter aux composantes radiale et orthoradiale du champ de vitesse et a rendu possible l'analyse de la forme des rouleaux de Taylor inertiels.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la réponse de fluides viscoélastiques lorsqu'on les soumet à un cisaillement. Ces fluides présentent un autre temps caractéristique que le temps de dissipation visqueuse : il s'agit d'un temps de relaxation élastique qui résulte de leurs propriétés viscoélastiques. Le premier fluide étudié a été une solution de polymère PAAm déjà considérée par Steinberg et Groisman. La courbe d'écoulement du PAAm présente une hystérésis. En effet, en augmentant puis en diminuant le taux de cisaillement, le fluide passe par un état de turbulence élastique à haut taux de cisaillement avant de former à bas taux de cisaillement des structures stables composées d'une paire de « rouleaux solitaires » contra-rotatifs nommées « diwhirls ». La formation de ces « diwhirls » par des successions de trempes en taux de cisaillement, la structure des « diwhirls » ainsi que la route vers la turbulence ont ainsi été étudiées et comparées aux résultats de la littérature. Une étude statistique de la turbulence élastique dans ce système de polymère est en cours. La seconde grande famille de fluide viscoélastique abordée concerne les solutions micellaires. Les régimes semi-dilué et dilué en passant par un régime de concentration intermédiaire ont été approfondis pour des solutions de CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,3-0,4 M), CTAT (0,16%) et CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,1-0,3 M) respectivement. Dans le régime semi-dilué, le phénomène de bande de cisaillement a ainsi pu être observé et grâce à la technique d'imagerie ultrasonore à deux dimensions. La forme des rouleaux émergeant dans la bande fluide a également été étudiée. Ces rouleaux, dont l'origine réside dans une instabilité élastique, présentent une asymétrie marquée. La turbulence élastique observée dans ce système est, quant à elle, à la fois chaotique dans l'espace et dans le temps. Dans le régime intermédiaire, le système étudié CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,1-0,3 M) correspond à la première concentration en CTAB qui ne présente pas de bande de cisaillement. Cette solution passe par différentes transitions avant d'atteindre la turbulence. Notamment, la première transition entre un écoulement de Couette laminaire et un écoulement avec rouleaux a été étudiée en détail et nous avons montré qu'il s'agissait d'une bifurcation de type fourche supercritique comme dans le cas newtonien. La forme des rouleaux a été comparée à ceux observés dans l'eau : on observe alors une asymétrie certes moins marquée que pour les rouleaux dans le CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,3-0,4 M) mais qui est bien présente. Cette asymétrie semble augmenter avec le nombre d'élasticité et une étude plus poussée sur cette dépendance

serait intéressante. Enfin, la turbulence inertio-élastique dans ce système a été observée et a montré un caractère chaotique temporellement mais cohérent spatialement. La encore, une analyse plus approfondie de la turbulence dans le CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,1-0,3 M) est en cours afin de la comparer au système de PAAm. Enfin, dans le régime dilué, l'étude de la solution de CTAT a montré la formation de structures induites par le cisaillement (SIS) qui déstabilisent l'écoulement pour conduire à une turbulence élastique. Nous avons vu que la dynamique du CTAT dépend à la fois de la température et du taux de cisaillement appliqué. Ainsi, le diagramme de stabilité, établi selon ces deux paramètres, présente différents domaines où l'écoulement (1) est laminaire, (2) présente une instabilité inertielle de type Taylor-Couette sans former de SIS, (3) forme des SIS qui conduisent à une turbulence à dominante élastique sans formation préalable d'instabilité inertielle de type Taylor-Couette et (4) transite d'un écoulement instable inertiellement à un écoulement turbulent élastiquement en passant par la formation de SIS. Il serait intéressant ici de pousser cette étude sur ce système micellaire pour un échantillon plus concentré afin de déterminer comment ce diagramme de stabilité est modifié en changeant la concentration du CTAT.

Dans une troisième partie, nous nous sommes concentrés sur la transition solide-fluide de solides mous. Une première étude sur la fluidification sous contrainte oscillante d'un fluide à seuil thixotrope, un gel de noir de carbone, a été menée. Les analyses par transformée de Fourier et par imagerie ultrasonore ont conclu à la définition de deux modes de fluidification différents à faible contrainte et à contrainte élevée. L'explication microscopique passe par l'adaptation du modèle de rupture retardée des gels colloïdaux soumis à une charge constante. Ce travail, toujours en cours, fait partie d'une des perspectives qu'il serait intéressant de mener à terme afin de conclure sur cette étude du CB. Pour finir, nous nous sommes intéressés à la rupture irréversible de gels de protéine sous contrainte constante. L'étude rhéologique, par imagerie ultrasonore et par visualisation directe a été limitée ici à une seule concentration en caséine, une seule température, et deux largeurs d'entrefers. À l'image de résultats récents sur le gel de noir de carbone, le fluage de ce matériau se divise en trois étapes :

- un régime de fluage primaire quasi-réversible caractéristique du fluage d'Andrade, où le taux de cisaillement décroît en loi de puissance sur environ quatre décades,
- un régime secondaire où des fractures nucléent et où le taux de cisaillement s'écarte du comportement en loi de puissance et passe par un minimum où le temps correspondant suit la loi de Monkman-Grant.
- un régime tertiaire où le taux de cisaillement diverge au niveau du temps de fluidification qui correspond à la croissance finale des fractures et à la rupture irréversible du gel.

Un parallèle entre le comportement sous fluage des microgels de carbopol, des gels de noir de carbone et des gels de caséine a également été proposé en fin de manuscrit.

Les perspectives ouvertes sur les différents systèmes évoqués ici sont nombreuses. Certaines font l'objet de mesures et analyses actuellement en cours. Ainsi, un travail a déjà été réalisé sur l'apparition d'instabilités dans des solutions newtoniennes (eau et glycérol) lorsqu'on les sollicite en déformation oscillante de grande amplitude (LAOS-Strain). L'influence de l'amplitude de la déformation et de la fréquence d'oscillation a été étudiée et un diagramme de stabilité selon ces deux paramètres a été construit. Une étude similaire, en déformation oscillante, a été effectuée sur une solution micel-

laire constituée de chlorure de cetylpyridinium et de salicylate de sodium (CPCI-NaSal) dans le régime semi-dilué. De plus, ce système de tensioactifs ont été étudié également sous cisaillement constant et les résultats d'imagerie ultrasonore ont été comparés à ceux obtenus par résonance magnétique nucléaire lors d'une collaboration avec Stefan Kuczera appartenant à l'équipe de Petrick Galvosas (Université Victoria de Wellington, Nouvelle-Zélande). Ce travail devrait donner des informations intéressantes sur la comparaison des deux techniques. Toujours dans le domaine des fluides viscoélastiques, une solution micellaire CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,2-0,3 M) a fait l'objet d'une attention particulière pendant un certain temps et les résultats obtenus doivent être encore complètement analysés pour mener à des conclusions définitives. Définir avec précision le comportement de ce système micellaire serait intéressant car sa composition se situe entre celle du CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,3-0,4 M) et celle du CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,1-0,3 M). Enfin, l'analyse de la turbulence dans les systèmes de PAAm et de CTAB- $\text{NaNO}_3$  (0,1-0,3 M) est en cours et une collaboration avec l'équipe de Sandra Lerouge dans le cadre du post-doctorat de Laura Casanellas devrait conduire à de nouveaux résultats prochainement.

Concernant les fluides à seuil, les résultats préliminaires sur une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau sont encourageants mais demandent un plus grand nombre d'expériences sur des durées d'acquisition plus grandes pour conclure quant aux observations présentées dans l'annexe C. L'étude du gel de noir de carbone soumis à une contrainte oscillante pourrait être également complétée par une analyse résolue en temps au cours d'une oscillation. L'adaptation du modèle de fluidification retardée des gels colloïdaux soumis à une charge constante ainsi que sa compréhension et le lien avec l'imagerie ultrasonore sont encore en cours. D'autre part, l'investissement sur les gels de protéine ne s'est pas limité aux résultats présentés ici. L'influence de différents paramètres comme la concentration du gel (notamment les proportions entre la caséine et la GDL), la température, la géométrie ou encore le mode de sollicitation (fluage vs contrainte oscillante) ont fait l'objet de nombreuses mesures qui n'ont pas pu être présentées ici et dont l'analyse devra être poursuivie.

Enfin, d'autres collaborations ont été mises en place au cours de cette thèse : avec l'entreprise Biomérieux concernant la prise et la rupture d'un gel d'agar-agar, avec l'entreprise Solvay concernant un système de silices précipitées, ou encore avec l'équipe de Pierre Dumont à Grenoble concernant des suspensions de microfibrilles de cellulose.

Ces deux dernières collaborations nous ont menés à une autre manière d'utiliser la technique d'imagerie ultrasonore. En effet, jusqu'ici la sonde ultrasonore était destinée à mesurer la vitesse locale de l'écoulement ou des déplacements locaux de particules. Cependant, les suspensions de silices et de microfibrilles de cellulose sont naturellement échogènes et ne nécessitent pas d'ensemencer le système par des traceurs acoustiques. La mesure de profils de concentration dynamiques semble donc intéressante pour ces systèmes qui ont tendance à sédimenter et à présenter des concentrations inhomogènes lorsqu'ils sont mis en écoulement. Cette mesure demande une modification du traitement des données de speckle que nous n'avons pas eu le temps de réaliser au cours de cette thèse.

De plus, l'imagerie ultrasonore a montré ses limites en termes de résolution spatiale à travers la mesure de la taille d'un diwhirl, mais également lors du fluage du gel de protéine. En effet, pour ce dernier, durant le régime de fluage primaire pour lequel les déplacements sont très faibles, la technique ne nous permet pas d'observer les modi-



fications structurelles du gel. Pour les visualiser, une possibilité serait d'adapter une cellule de cisaillement de faibles dimensions sur un microscope confocal.

Enfin, l'imagerie ultrasonore est ici couplée avec un rhéomètre rotatif équipé d'une cellule de Taylor-Couette. Un des projets futurs est d'adapter la sonde ultrasonore sur une cellule de Hele-Shaw afin de visualiser les dynamiques de l'écoulement d'une solution de polymères constitué de HPAm (voir annexe B) dans cette géométrie.

# Annexe A

## Critère de Rayleigh et entrefer effectif

Que devient le critère de Taylor lorsqu'on utilise des entrefers plus grands et que l'on passe en co- ou contra-rotation ? La réponse à cette question resta cachée des dizaines d'années à cause du mauvais choix des variables adimensionnées suggérés par le diagramme de stabilité de Taylor. Taylor suggéra d'utiliser les deux nombres de Reynolds  $Re_i = \Omega_i R_i d / \nu$  et  $Re_o = \Omega_o R_o d / \nu$  imposés par les cylindres intérieurs et extérieurs. Dans ce cas comment choisir  $\overline{Re}$  utilisé dans le critère de Taylor ? Pour clarifier cette situation Rayleigh avait introduit auparavant un critère ainsi que la notion d'entrefer effectif. En effet, Rayleigh proposa le critère suivant :

$$\text{si } R_i^2 \Omega_i > R_o^2 \Omega_o \text{ alors l'écoulement devient instable.} \quad (\text{A.1})$$

La ligne en pointillés rouges située sur la figure 3.3 fut tracée par Taylor pour comparer ses résultats expérimentaux avec le critère de Rayleigh. Dans le cas de la co-rotation, l'accord est correct mais uniquement lorsque  $\overline{Re} \rightarrow \infty$ . De plus, dans le cas de la contra-rotation, ce critère laisse penser que l'écoulement est toujours stable ce qui n'est visiblement pas le cas. Il faut donc affiner le critère de Rayleigh. Dans le cas de la co-rotation, la frontière de stabilité est définie approximativement en prenant  $Ta = m$ , où  $m = 41,2$  et  $\overline{Re} = \tau | \Omega_i - \Omega_o | Re_i / d$ . On obtient alors la relation suivante :

$$Re_i \simeq m \Lambda^{-1/2} + Re_o \quad (\text{A.2})$$

De plus, le critère de Rayleigh n'est pas invariant par changement de référentiel et ceci a une importance capitale dans le cas de la contra-rotation. Comme on peut le voir sur la figure 3.3(a), Taylor a montré que dans le cas de cylindres contra-rotatifs, les rouleaux étaient confinés dans un entrefer effectif compris entre le cylindre intérieur et une surface appelée « surface nodale ». Cette surface correspond à une vitesse nulle de l'écoulement dans le référentiel du laboratoire. En prenant l'approximation des petits entrefers, la taille  $\alpha d$  du domaine intérieur compris entre le cylindre intérieur et la surface nodale est simplement donnée par :  $\alpha \simeq Re_i / (Re_i - Re_o)$  et la longueur d'onde des rouleaux  $\lambda$  varie comme  $\lambda \simeq 2\alpha d$ . Le critère de Rayleigh n'est donc satisfait que dans le domaine intérieur où la surface nodale se comporte comme un cylindre extérieur fixe. Pour trouver le seuil de l'instabilité, il faut alors évaluer le nombre de Taylor seulement

## ANNEXE A. CRITÈRE DE RAYLEIGH ET ENTREFERE EFFECTIF

---

dans le domaine intérieur. On définit alors  $Ta_\alpha$  par

$$Ta_\alpha = \lambda_\alpha^{1/2} Re_\alpha = (\alpha d / R_i)^{1/2} \Omega_i R_i \alpha d / \nu \quad (\text{A.3})$$

Ceci signifie que dans ce cas, le temps caractéristique de dissipation visqueuse doit être lui aussi pris dans le domaine intérieur :  $\tau_\alpha = (\alpha d)^2 / \nu$ . Ainsi, l'écoulement dans le domaine intérieur devient instable si  $Ta_\alpha > m$ . En exprimant  $\alpha$  en fonction de  $Re_i$  et  $Re_o$ , on peut obtenir une bonne approximation de la frontière de stabilité dans le cas de la contra-rotation :

$$\frac{Re_i^{5/2}}{(Re_i - Re_o)^{3/2}} \simeq m \Lambda^{-1/2}. \quad (\text{A.4})$$

On pourra vérifier que lorsque  $Re_o \rightarrow 0$ , les équations A.2 et A.4 sont équivalentes à :

$$Re_i \simeq m \Lambda^{-1/2}. \quad (\text{A.5})$$

Cette notion de surface nodale et d'entrefer effectif se retrouve lorsqu'on soumet le fluide non plus à un cisaillement constant mais à des oscillations de grande amplitude. Cette étude des instabilités à déformation oscillante dans un fluide newtonien ne sera pas décrite dans ce manuscrit mais a fait l'objet d'une campagne de mesures ultrasonores dans le cadre de ma thèse.

# Annexe B

## Etude préliminaire d'une solution de HPAm

Quelques expériences préliminaires ont été effectuées dans une solution de polyacrylamide hydrolysée (HPAm) de concentration 0,4% dans le but d'observer la formation de « diwhirls » dans une solution autre que le PAAm.

### B.1 Préparation de la solution

Pour préparer une solution de HPAm, on utilise du polyacrylamide partiellement hydrolysé [Wever et al., 2011] (3630 Flopaam S) fourni par la société SNF SAS sous forme de poudre sèche. Ce polymère est anionique et soluble dans l'eau et présente un poids moléculaire moyen de  $18 \cdot 10^6$  g/mol. Les solutions de polymère ont été préparées en ajoutant de petites quantités de poudre à de l'eau distillée sous agitation constante à 400 tr/min et à une température de 50°C toutes les 30 minutes jusqu'à ce qu'on atteigne la concentration finale souhaitée ici : 4000 ppm soit  $C = 0,4\%$  en masse. La solution est agitée pendant une durée totale d'environ 24 heures jusqu'à ce qu'elle devienne entièrement transparente. De plus, ici 1% en masse de particules (Dynoseeds TS20, diamètre 20  $\mu\text{m}$ ) a été ajouté par petites quantités dans la solution de HPAm sous agitation constante à 450 tr/min à une température de 50°C de manière à ce que ces agents de contraste acoustique diffusent le signal sonore envoyé par la sonde. Enfin la solution a été agitée pendant une durée totale d'environ 24 heures pour s'assurer de son homogénéité.

### B.2 Formation de diwhirls dans du HPAm

En appliquant une rampe linéaire montante puis descendante en taux de cisaillement entre  $\dot{\gamma}=1$  et  $1000 \text{ s}^{-1}$ , on observe l'écoulement passer d'un état laminaire, à un état d'oscillations désordonnées, puis en redescendant on observe la formation de diwhirls jusqu'à retourner vers un état laminaire aux faibles taux de cisaillement. La figure B.1 montre les diagrammes spatio-temporels obtenus par les techniques de visualisation directe et d'imagerie ultrasonore synchronisées sur la même expérience. Les billes de verre dans cette expérience suffisent à engendrer un contraste suffisamment prononcé

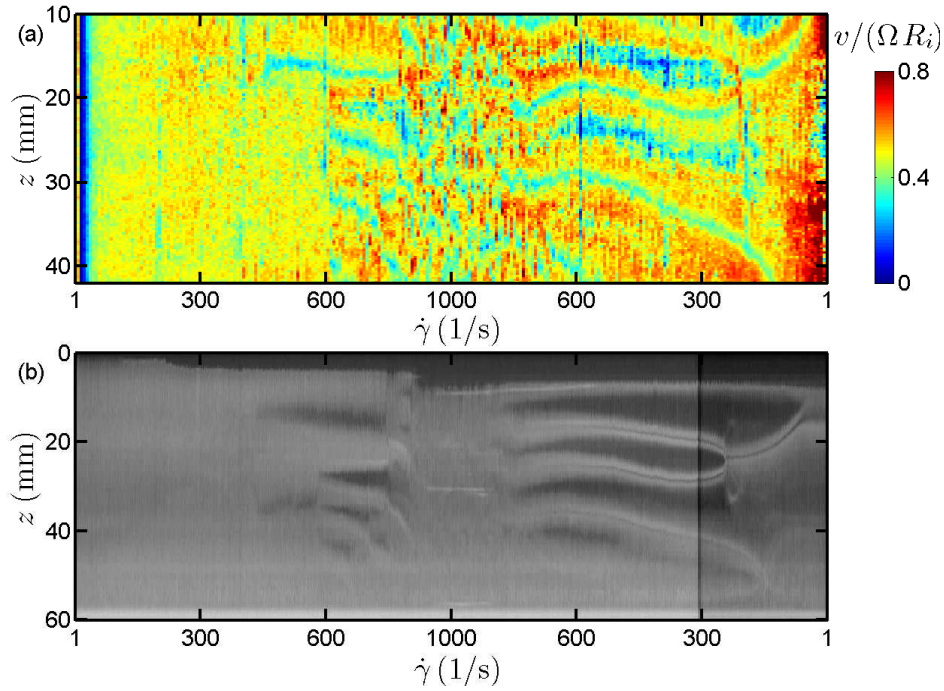


FIGURE B.1 – Diagrammes spatio-temporels synchronisés montrant le passage par différents états d’une solution de HPAm de concentration 0,4% à  $T=20^{\circ}\text{C}$  en appliquant une rampe linéaire montante puis descendante en taux de cisaillement entre  $\dot{\gamma}=1$  et  $1000\text{ s}^{-1}$ . (a) Mesures ultrasonores de la vitesse adimensionnée  $v(r_0, z, t)/(\dot{\gamma}d)$  à une position  $r_0 \simeq R_i + d/4$  du rotor en utilisant un échantillon avec des billes de verre. La vitesse de la rampe est de  $0,8\text{ s}^{-1}/\text{s}$ . (b) Visualisation directe des motifs d’écoulement sur le même échantillon et synchronisée avec la mesure ultrasonore. L’échelle de gris représente l’intensité lumineuse réfléchiée et collectée par une caméra située en dehors de la cellule de Couette transparente. Les deux techniques de visualisations suggèrent que le chemin suivi par l’échantillon est sensiblement le même que pour le PAAm :  $\text{CF} \rightarrow \text{DO} \rightarrow \text{DW} \rightarrow \text{CF}$  avec le développement de structure désordonnées vers  $\dot{\gamma} = 450\text{ s}^{-1}$  qui conduisent à une turbulence élastique et la formation de diwhirls à la redescente qui semblent cependant légèrement moins stables et plus influencés par le haut et le bas de la cellule.

lorsque les diwhirls se forment. On remarque tout de même que les diwhirls ont ici une durée de persistance plus faible et semble plus influencés par les conditions aux bords. On voit en effet qu’ils sont attirés par le haut et le bas de la cellule et ont un mouvement vertical selon  $z$  alors que pour la solution de PAAm, les diwhirls formés à une altitude  $z$  bien définie étaient stables. Comme il a été décrit dans la revue de Muller [2008], les diwhirls ne sont pas propres à un seul système de polymère et sont effectivement observables dans d’autres solutions polymériques.

# Annexe C

## Bandes de cisaillement transitoires dans les fluides à seuil « simples »

### C.1 Le carbopol

#### C.1.1 Motivations

L'équipe de Sébastien Manneville s'est récemment focalisée sur la « dynamique de mise en écoulement » de matériaux mous vitreux. Grâce à des études résolues en temps et en espace, ils ont pu montrer que même si l'état stationnaire d'un fluide à seuil simple, un microgel de carbopol, est homogène, celui-ci passe par un régime de bandes de cisaillement transitoires dont la durée  $\tau_f$  décroît comme une loi de puissance du taux de cisaillement appliqué :  $\tau_f \sim \dot{\gamma}^{-\alpha}$ , où l'exposant  $\alpha$  dépend du matériau [Divoux et al., 2010]. La figure C.1 présente une succession typique de profils de vitesse ainsi que les temps de fluidification  $\tau_f$  vs  $\dot{\gamma}$ . Par ailleurs, des expériences à contrainte imposée ont mis en évidence un scénario de fluidification similaire avec  $\tau_f \sim (\sigma - \sigma_y)^{-\beta}$  qui permet de retrouver la rhéologie non-linéaire stationnaire d'Herschel-Bulkley :  $\sigma = \sigma_y + A\dot{\gamma}^n$  où l'exposant  $n$  apparaît comme le rapport des deux exposants caractéristiques des

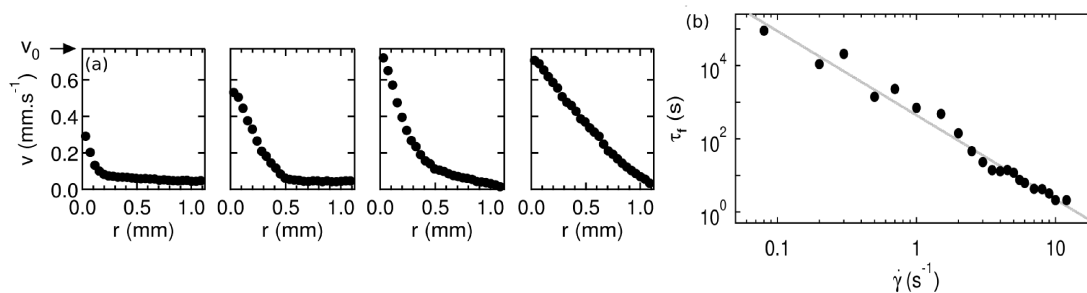


FIGURE C.1 – **Fluidification d'un microgel de carbopol.** (a) Profils de vitesse  $v(r, t)$  mesurés par vélocimétrie ultrasonore dans un microgel de carbopol cisailé à  $\dot{\gamma} = 0,7 \text{ s}^{-1}$  en géométrie de Taylor-Couette cylindrique d'entrefer 1 mm pour  $t = 27, 1013, 1730$  et  $9413 \text{ s}$  de gauche à droite.  $v_0$  indique la vitesse au rotor et  $r$  correspond à la distance au cylindre intérieur tournant. (b) Temps de fluidification totale  $\tau_f$  vs  $\dot{\gamma}$ . L'ajustement en gris est  $\tau_f \sim \dot{\gamma}^{-2/3}$ . Figure extraite de [Perge et al., 2013].

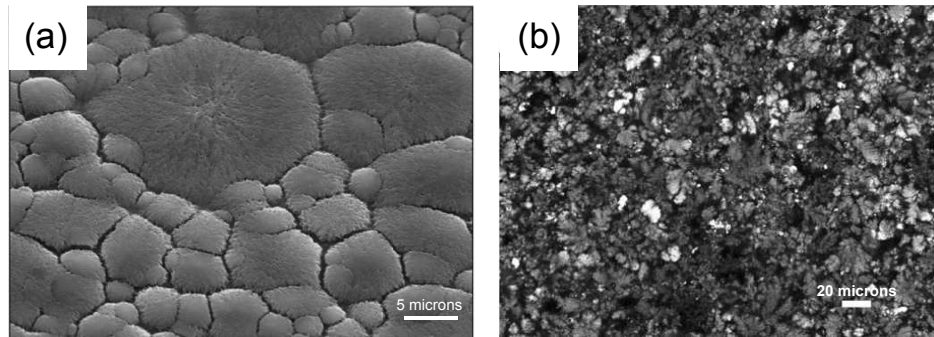


FIGURE C.2 – **Microstructure d'un gel de carbopol.** (a) Image obtenue par microscopie électronique à balayage (MEB) d'un gel de carbopol (940) neutralisé de concentration 0,04% en masse. Figure tirée de [Piau, 2007]. (b) Image au microscope confocal du carbopol (ETD 2050) de concentration 0,5% en masse à pH=3,0 avant gonflement des microgels. Un marqueur, l'acridine orange a été ajouté. Figure tirée de [Gutowski et al., 2012].

processus de fluidification :  $n = \alpha/\beta$  [Divoux et al., 2011b]. Insistons ici sur le fait que la valeur de la contrainte seuil  $\sigma_y$  déterminée à partir de la courbe d'Herschel-Bulkley est la même (aux incertitudes de mesures près) que celle qui apparaît dans la loi régissant temps de fluidification.

Le but de ce paragraphe est de confirmer brièvement l'existence de ces bandes de cisaillement transitoires dans d'autres échantillons de carbopol et, à l'aide de la technique d'imagerie ultrasonore bidimensionnelle décrite au chapitre 2, de tester la présence ou non d'hétérogénéités de l'écoulement selon la direction verticale (de la vorticité) dans une cellule de Taylor-Couette.

### C.1.2 Préparation du microgel de carbopol

Le système de microgel étudié est constitué de carbopol ETD 2050 qui comprend des polymères d'acide acrylique hautement réticulés avec un polyéther de polyalcényle [Roberts et Barnes, 2001; Baudonnet et al., 2004]. Le microgel est traditionnellement préparé en deux étapes : (i) le polymère est dispersé dans de l'eau conduisant à une suspension d'agrégats de carbopol et (ii) un agent neutralisant est ajouté (dans notre cas de l'hydroxyde de sodium) conduisant au gonflement du polymère et à la formation du microgel. La microstructure d'un tel gel consiste en un assemblage de particules molles de polymères gonflés et bloquées les unes contre les autres, dont la taille peut varier de quelques microns à environ 20 microns [Ketz et al., 1988; Oppong et al., 2006; Lee et al., 2011]. En effet, l'acide polyacrylique passe de sa forme acide à basique sous l'ajout de la base  $\text{HO}^-$  et entraîne une répulsion entre les chaînes de polymères. Cette répulsion conduit à une augmentation du volume de la pelote. La taille finale dépend du type de carbopol utilisé [Baudonnet et al., 2004], de sa concentration [Roberts et Barnes, 2001], de la valeur finale du pH [Lee et al., 2011], du type d'agent neutralisant [Kim et al., 2003] mais également de la vitesse d'agitation durant la neutralisation [Baudonnet et al., 2004].

La figure C.2 montre des images obtenues par microscopie électronique à balayage et par microscopie confocale de deux types de carbopol : 940 et ETD 2050. L'échelle

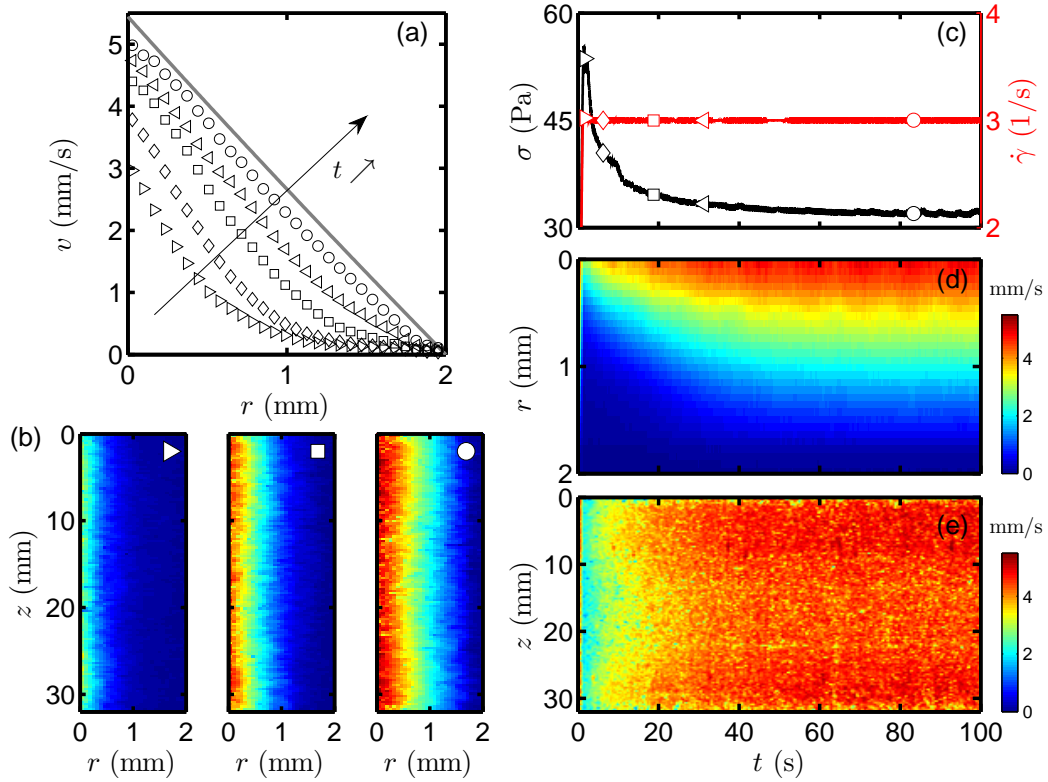


FIGURE C.3 – Fluidification d’un microgel de carbopol de concentration 1% en masse soumis à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 3 \text{ s}^{-1}$ . (a) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur  $z$  de la sonde à différents temps :  $t = 1,7$  ( $\triangleright$ ),  $6,2$  ( $\diamond$ ),  $18,7$  ( $\square$ ),  $31,2$  ( $\triangleleft$ ) et  $83,3$  s ( $\circ$ ). La ligne grise correspond au profil de vitesse linéaire attendu pour un fluide Newtonien dans le régime laminaire. (b) Cartes du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués par les symboles en haut à droite de l’image. Chaque image correspond à une moyenne sur 50 tirs envoyés toutes les 0,017 s. (c) Réponses en contrainte  $\sigma(t)$  et taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre, enregistrés simultanément et synchronisés en temps avec les images de vitesse. Les symboles indiquent les temps correspondant aux profils et aux images de vitesse montrées en (a) et (b). (d) et (e) Diagrammes spatio-temporels de la vitesse  $\langle v(r, t) \rangle_z$  et de  $v(r_0, z, t)$  pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/8$  du rotor.  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $d = 2$  mm, parois lisses.

nous donne ainsi une idée de la taille typique des particules de polymères gonflés<sup>1</sup>.

### C.1.3 Fluidification à taux de cisaillement imposé

Après l’étude avec la vélocimétrie ultrasonore unidimensionnelle [Divoux et al., 2012], l’imagerie ultrasonore bidimensionnelle nous a permis de visualiser l’écoulement et la fluidification du microgel de carbopol dans la direction verticale. De manière à pouvoir récupérer un signal rétrodiffusé, des billes de verre en concentration 1% en masse sont ajoutées à la solution et jouent le rôle d’agents de contraste acoustique. L’ajout de ces sphères n’affecte pas ou peu la rhéologie de l’échantillon comme cela a

1. À noter ici, que l’image (b) a été prise à un pH faible avant que le carbopol soit neutralisé.



été vérifié dans [Divoux et al., 2011a]. La figure C.3 illustre la résolution temporelle et spatiale à deux dimensions d'un démarrage en écoulement d'un gel de carbopol de concentration 1% en masse lorsqu'on lui impose un taux de cisaillement constant de  $\dot{\gamma} = 3 \text{ s}^{-1}$ . À ce taux de cisaillement, la fluidification du gel commence quasiment instantanément ( $t < 2 \text{ s}$ ) et le maximum de la réponse en contrainte est atteint au bout de  $t = 1,7 \text{ s}$  [Fig.C.3(c)]. La relaxation de la contrainte se déroule alors en deux étapes séparées par un décrochement visible ici à  $t \simeq 10 \text{ s}$  Fig.C.3(c)]. La synchronisation entre l'imagerie ultrasonore et la rhéologie montre alors que :

- (i) pour  $t \lesssim 10 \text{ s}$ , après une réponse élastique de courte durée, le gel accroche à la paroi intérieure de la cellule de Couette et une bande cisailée naît dans la région proche du rotor en  $r = 0$ . La taille de cette bande cisailée augmente progressivement au cours du temps [Fig.C.3(a) et (d)].
- (ii) pour  $t \gtrsim 10 \text{ s}$ , les profils de vitesse deviennent linéaires en quelques dizaines de secondes, l'écoulement devient homogène suivant la direction radiale  $r$ , l'état stationnaire est alors atteint et la fluidification de l'échantillon est totale.

Le temps de fluidification peut alors être extrait en analysant les profils de vitesse enregistrés pendant l'expérience et en déterminant l'instant où la taille  $\delta$  de la bande cisailée proche du rotor a envahi l'ensemble de l'entrefer [Divoux et al., 2010]. Dans la littérature, une telle évolution est appelée « bandes de cisaillement transitoires » (TSB pour « Transient Shear Banding » en anglais) Divoux et al. [2011b]. Ce comportement très robuste est observable à la fois à taux de cisaillement imposé et à contrainte imposée [Divoux et al., 2011a] où pour des contraintes proches du seuil, on observe au préalable un régime de fluage d'Andrade que nous avons déjà observée dans le chapitre 8 sur les gels de protéines. Ici, la synchronisation entre l'imagerie ultrasonore et la rhéologie montre que les bandes naissent au niveau du pic de la réponse en contrainte et évoluent jusqu'à se rejoindre en une seule pente légèrement après le décrochement présenté à  $t \simeq 10 \text{ s}$  [Fig.C.3(c)]. Cette signature rhéologique est interprétée comme la fin des bandes de cisaillement. Cette correspondance entre mesures ultrasonores et rhéologie avait déjà été établie par Divoux et al. [2010]. L'apport des quelques mesures sur le carbopol effectuées au cours de ma thèse concerne donc simplement la visualisation de cette fluidification à deux dimensions. On constate alors que la fluidification reste homogène selon la direction verticale  $z$  et qu'aucun évènement particulier est notable [Fig.C.3(b) et (e)]. Le même type d'expérience a été réalisé à contrainte imposée et là encore le résultat est sans appel : la fluidification reste homogène dans la direction verticale  $z$ . Dans ce cas, l'apport principal de l'imagerie ultrasonore à deux dimensions est d'augmenter la statistique des mesures en enregistrant simultanément 128 signaux au lieu d'un seul avec la technique de vélocimétrie ultrasonore unidimensionnelle. De plus, alors que dans les études précédentes le carbopol avait été mélangé « à la main », dans cette étude, le protocole est bien plus contrôlé. En effet, le carbopol est préparé mécaniquement avec un agitateur magnétique imposant une vitesse de rotation de 2100 tr/min pendant 24h<sup>2</sup>. Le phénomène de bande de cisaillement transitoire est donc ici confirmé et ne peut être attribué à ce défaut de préparation initiale.

---

2. L'effet d'un mélange fort est de rendre l'échantillon plus homogène, de produire des tailles caractéristiques de structure de l'ordre du micron et de diminuer le seuil par rapport à celui mélangé à la main.

Étant donné que ce système a été amplement étudié par Divoux et al. [2012], nous n'avons pas poussé plus loin nos investigations sur le microgel de carbopol et nous nous sommes plutôt tournés vers un autre type de fluide à seuil « simple » susceptible de présenter des bandes de cisaillement transitoires : les émulsions concentrées.

## C.2 Les émulsions concentrées

### C.2.1 Préparation de l'émulsion

L'émulsion étudiée est obtenue en ajoutant progressivement de l'huile de polydiméthylsiloxane (PDMS) dans un mélange d'eau et de tensioactif (Ifralan à 25% en masse). Cette solution est tout d'abord agitée doucement à la main pour obtenir un mélange grossier et très polydisperse. Le tensioactif a ici un rôle stabilisateur. Il est également susceptible de contrôler l'attraction entre les gouttelettes via l'interaction de déplétion [Asakura et Oosawa, 1958; Aronson, 1989]. Ensuite l'échantillon est placé dans un mélangeur de Couette de petit entrefer (imposant un taux de cisaillement homogène) décrit en détail dans Mabillet et al. [2010] qui permet en jouant sur la vitesse de rotation, le débit ou encore la taille du trou de sortie, de fragmenter les gouttes les plus grosses en gouttelettes de diamètre plus faible dont la taille est fixée par le taux de cisaillement. On récupère alors une émulsion quasi-monodisperse dont le diamètre moyen des gouttes d'huile est de  $1,5 \mu\text{m}$  avec une polydispersité de 30 %. La fraction volumique finale en gouttelettes d'huile de l'émulsion est ici de 68%. Les émulsions étudiées ici ont été préparées au Centre de Recherche Paul Pascal à Bordeaux en collaboration avec Thibaut Divoux, Éric Laurichesse et Véronique Schmitt. L'émulsion préparée ici est-elle un fluide à seuil « simple » ou présente-t-elle de la thixotropie ? Peut-on la considérer comme une émulsion non-adhésive ? Voici l'enjeu et les questions que l'on se pose sur ce nouveau système.

Les expériences qui vont être présentées dans ce chapitre sont des expériences courtes et préliminaires. Elles n'ont fait à ce jour l'objet d'aucune statistique. Cependant, elles vont pouvoir nous donner une idée du comportement de ce fluide à seuil. De manière à pouvoir utiliser la technique d'imagerie ultrasonore, on ajoute 1% de billes de verre de diamètre  $40 \mu\text{m}$ . Les mesures rhéologiques sont effectuées dans une cellule de Taylor-Couette de rayon intérieur  $R_i = 23 \text{ mm}$  et d'entrefer  $d = 2 \text{ mm}$  qui est elle-même immergée dans une cuve d'eau dont la température est contrôlée par un bain thermostaté et est fixée à  $T = 25,0 \pm 0,1^\circ\text{C}$ .

### C.2.2 Caractéristiques rhéologiques de l'émulsion

Avant de réaliser des expériences de sollicitation à taux de cisaillement imposé ou à contrainte imposée, observons les caractéristiques rhéologiques de l'émulsion. Elles sont montrées sur les figures C.4 et C.5. La rampe en fréquence à amplitude de déformation fixée, tracée sur la figure C.4(a), nous donne les évolutions des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  dans le régime linéaire. Cette évolution est caractéristique des solides mous avec un module élastique  $G'$  qui reste essentiellement constant et nettement plus grand que le module visqueux  $G''$  qui, quant à lui, augmente à haute fréquence. Cette augmentation à haute fréquence est attribuée au glissement des gouttes d'huile les unes

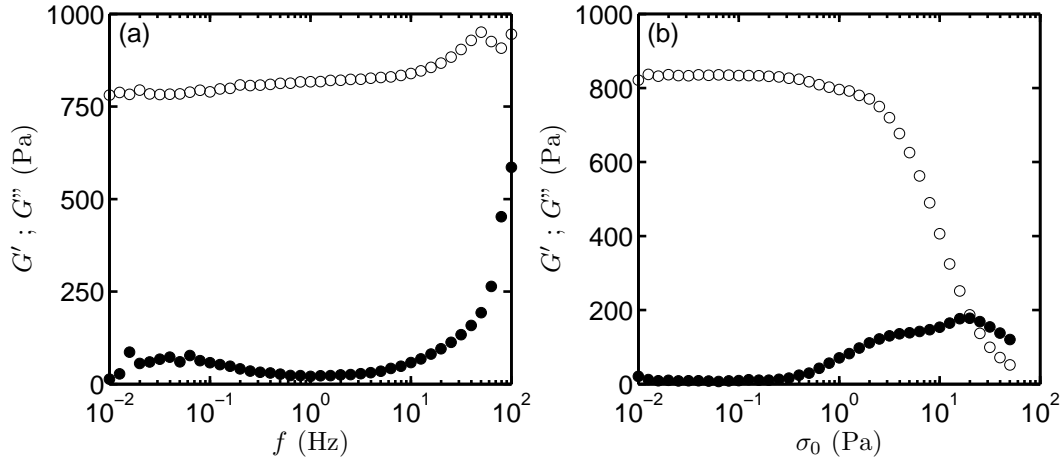


FIGURE C.4 – **Rhéologie linéaire d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau.** Évolution des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  en fonction (a) de la fréquence d'oscillation  $f$  pour une amplitude de déformation de  $\gamma_0 = 0,2\%$  et (b) de l'amplitude de la contrainte oscillante  $\sigma_0$  pour une fréquence de  $f = 1$  Hz. Dans les deux cas, le temps d'attente par point est de 60 s.

contre les autres [Liu et al., 1996; Höhler et Addad, 2005]. La rampe en amplitude de contrainte à fréquence d'oscillation fixée, tracée sur la figure C.4(b), nous permet d'estimer une contrainte seuil  $\sigma_{y1} = 20 \pm 2$  Pa lorsque les modules viscoélastiques se croisent en  $G' = G''$  où l'émulsion passe d'un comportement solide  $G' > G''$  à fluide  $G' < G''$ . Comme nous l'avons vu dans le cas du gel de noir de carbone, cette contrainte seuil n'est souvent qu'indicative car elle dépend de la vitesse de la rampe notamment. Des courbes d'écoulement ont été également mesurées sur cet échantillon en diminuant rapidement le taux de cisaillement selon une rampe descendante partant de  $50 \text{ s}^{-1}$  jusqu'à  $0,01 \text{ s}^{-1}$  puis montante de mêmes caractéristiques. On remarque alors qu'aucun cycle d'hystérésis n'est observé à l'inverse d'autres fluides à seuil comme la laponite ou encore le gel de noir de carbone [Divoux et al., 2013]. Cette absence d'hystérésis est *a priori* caractéristique de l'absence de toute thixotropie. De plus, pour des valeurs de taux de cisaillement supérieures à  $0,1 \text{ s}^{-1}$ , les données peuvent être ajustées par la loi de Herschel-Bulkley :

$$\sigma = \sigma_{y2} + A\dot{\gamma}^n \quad (\text{C.1})$$

avec  $\sigma_{y2} = 40$  Pa,  $A = 14 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$  et  $n = 0,5$ . Cette valeur de l'exposant  $n$  est en accord avec les valeurs de la littérature concernant les émulsions [Salmon et al., 2003c], le carbopol [Divoux et al., 2011a] ou encore le gel de noir de carbone [Grenard et al., 2014]. Enfin, la déviation à la loi de Herschel-Bulkley observée à bas taux de cisaillement est attribuée au glissement aux parois à cause des conditions aux bords lisses utilisées ici [MEEKER et al., 2004; Seth et al., 2012].

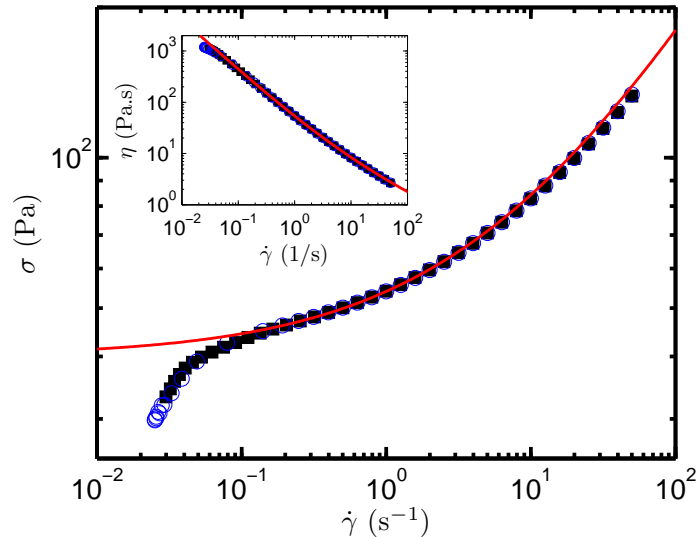


FIGURE C.5 – **Courbe d'écoulement d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau.** Visualisation  $\sigma$  vs  $\dot{\gamma}$  et en insert  $\eta$  vs  $\dot{\gamma}$ . Le taux de cisaillement suit une rampe descendante (■) de  $50 \text{ s}^{-1}$  jusqu'à  $0,01 \text{ s}^{-1}$  avec un échantillonnage logarithmique de 10 points par décade et un temps d'attente de 10 s par point puis une rampe montante de même caractéristiques (○). Aucun hystérésis n'est observé. La ligne rouge indique une interpolation en loi de Herschel-Bulkley :  $\sigma = \sigma_{y2} + A\dot{\gamma}^n$  avec  $\sigma_{y2} = 40 \text{ Pa}$ ,  $A = 14 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$  et  $n = 0,5$ .

### C.2.3 Fluidification à taux de cisaillement imposé

Le protocole expérimental utilisé ici est le suivant. Avant de commencer l'expérience à taux de cisaillement imposé, nous appliquons (i) un précisaillement à  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$  pendant 20 s pour effacer l'histoire de l'échantillon, (ii) une déformation oscillante d'amplitude  $\gamma_0 = 0,1\%$  et de fréquence d'oscillation  $f = 1 \text{ Hz}$  pendant 3 min pour mesurer les modules viscoélastiques : on trouve typiquement  $G' = 870 \text{ Pa}$  et  $G'' = 17 \text{ Pa}$ , enfin (iii) l'expérience débute en imposant le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . Dans le mode d'utilisation du rhéomètre, (« Soft Bearing » mode de l'ARG2), le rhéomètre présente un temps de réponse non négligeable. Sur la figure C.6(a), on note alors que le taux de cisaillement demandé n'est pas correctement imposé dès le début de l'expérience<sup>3</sup>. De ce fait, la réponse en contrainte passe par un transitoire avant d'atteindre son maximum et relaxer ensuite vers sa valeur stationnaire [Fig.C.6(b)]. Contrairement à ce qu'il a été observé avec le carbopol, cette relaxation ne présente pas de décrochement comme le montre le zoom sur l'expérience à  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$  dans l'insert de la figure C.6(b). Ceci suggère que le scénario est différent. En effet, la synchronisation entre les mesures d'imagerie ultrasonore et la rhéologie présentée sur la figure C.7 pour un taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$  montre que les bandes de cisaillement naissent avant le dépassement de la réponse en contrainte et que l'état stationnaire est atteint très rapidement une

3. Ceci est dû au fait que le rhéomètre utilisé est un rhéomètre à contrainte imposée et non à cisaillement imposé. Ce défaut est ici très ennuyeux car il rend caduque toute interprétation du maximum observé sur la réponse en contrainte. Nous avons remarqué qu'il est nettement moins important sur le rhéomètre Anton Paar MCR301, aussi disponible dans l'équipe. C'est pourquoi de nouvelles expériences sur les émulsions sont envisagées sur ce deuxième rhéomètre.

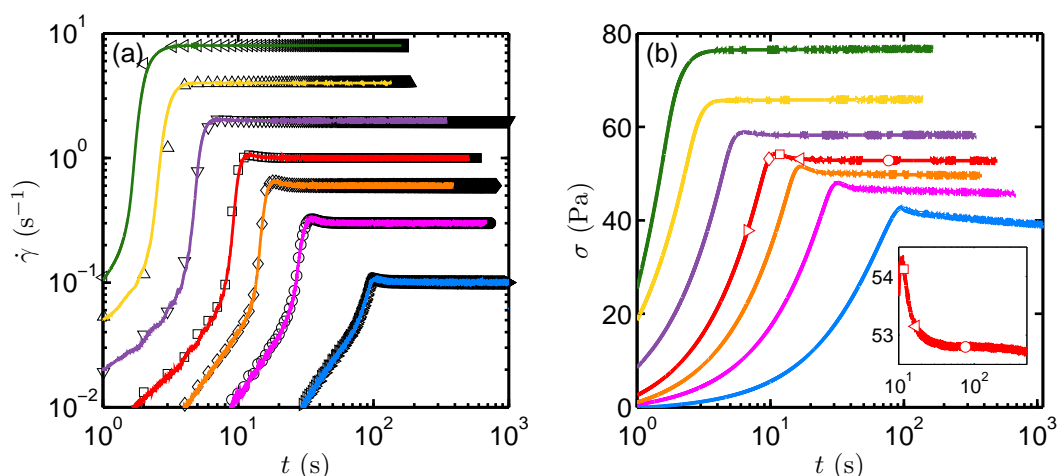


FIGURE C.6 – Réponse rhéologique d’une émulsion d’huile de PDMS dans de l’eau à un taux de cisaillement imposé. (a) Évolution temporelle du taux de cisaillement et temps de réaction du rhéomètre pour différents  $\dot{\gamma}$  demandés :  $0,1$  ( $\triangleright$ ),  $0,3$  ( $\circ$ ),  $0,6$  ( $\diamond$ ),  $1$  ( $\square$ ),  $2$  ( $\nabla$ ),  $4$  ( $\triangle$ ) et  $8$   $s^{-1}$  ( $\triangleleft$ ) de bas en haut. (b) Réponse du signal de contrainte  $\sigma(t)$  en fonction du temps pour ces mêmes taux de cisaillement. En insert de (a) : zoom sur la relaxation de la contrainte pour un taux de cisaillement de  $0,1$   $s^{-1}$ . Les lignes représentent les données enregistrées avec un logiciel d’acquisition rapide de rhéologie synchronisé avec la procédure du rhéomètre.

fois ce pic franchi. De plus, on remarque sur ces profils que l’état stationnaire présente un glissement important aux deux parois interne et externe de la cellule de Couette. Ce glissement explique que l’écoulement ne rejoint pas le profil linéaire attendu pour un fluide newtonien dans le régime laminaire. Ces expériences préliminaires nécessitent d’être répétées en géométrie rugueuse pour pallier à ce problème. Le temps de fluidification de l’émulsion à ce taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 1$   $s^{-1}$  est ici faible. En effet, sur la durée de l’expérience ( $100$  s), le profil de vitesse ne semble plus évoluer pour  $t \gtrsim 50$  s. Toutefois, des expériences sur des durées plus longues sont nécessaires pour confirmer que l’état stationnaire est réellement atteint.

Estimer l’évolution du temps de fluidification en fonction du taux de cisaillement imposé est prématuré. En effet, la correspondance entre imagerie ultrasonore et rhéologie ne nous a pas permis pour l’instant de mettre en évidence une signature marquée de  $\tau_f$  au niveau de la réponse en contrainte. Ce temps  $\tau_f$  ne peut donc être déterminé qu’à partir des mesures d’imagerie ultrasonore. Or la plage de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  sur laquelle on observe des bandes de cisaillement transitoires est relativement faible et les expériences préliminaires effectuées à plus faible taux de cisaillement n’ont pas été suffisamment longues pour déterminer le temps de fluidification. Par ailleurs, le temps de réponse non-négligeable du rhéomètre lors de l’application du taux de cisaillement demandé reste un problème pour ce rhéomètre à contrainte imposée. C’est pourquoi nous nous tournons à présent vers le mode de fluidification à contrainte imposée.

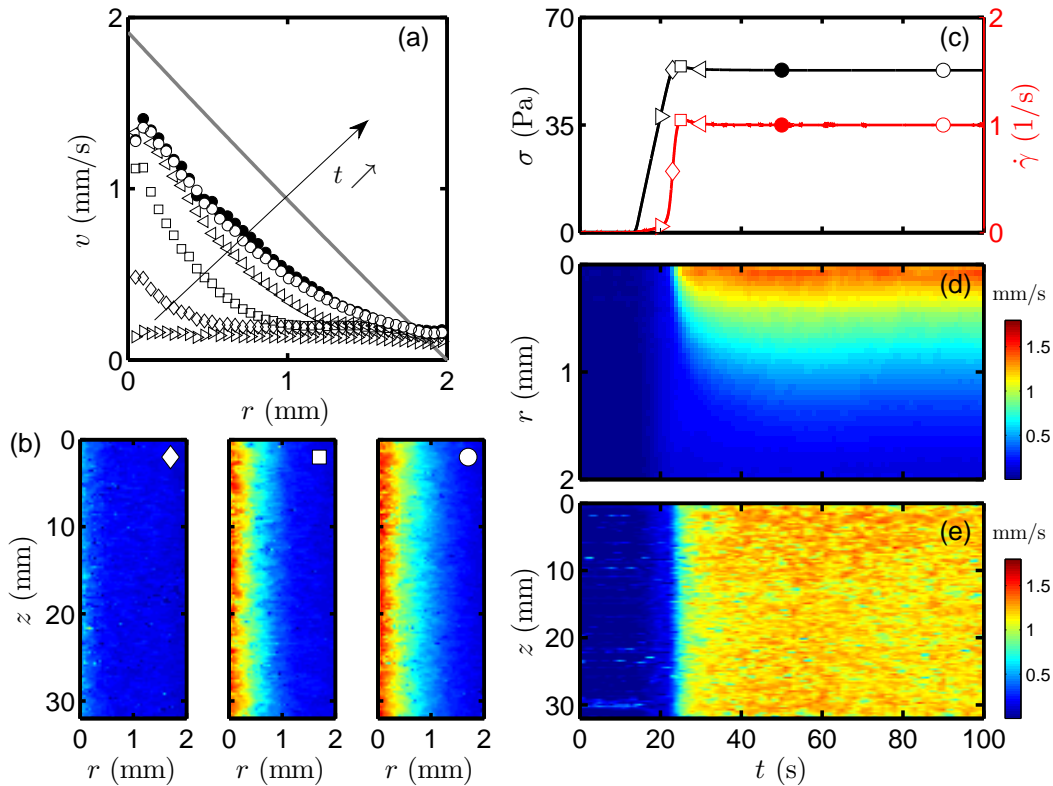


FIGURE C.7 – Fluidification d’une émulsion d’huile de PDMS dans de l’eau soumise à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ . (a) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur  $z$  de la sonde à différents temps :  $t = 20$  (▷),  $23$  (◊),  $25$  (◻),  $30$  (◄),  $50$  (●) et  $90$  s (○). Le temps  $t = 0$  s correspond au début de l’acquisition des USV, l’expérience démarre à  $t = 13$  s. La ligne grise correspond au profil de vitesse linéaire attendu pour un fluide newtonien dans le régime laminaire. (b) Cartes du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués par les symboles en haut à droite de l’image. Chaque image correspond à une moyenne sur 100 tirs envoyés toutes les 0,02 s. (c) Réponse en contrainte  $\sigma(t)$  et taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre, enregistrés simultanément et synchronisés en temps avec les images de vitesse. Les symboles indiquent les temps correspondant aux profils et aux images de vitesse montrées en (a) et (b). (d) et (e) Diagrammes spatio-temporels de la vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  et de  $v(r_0, z, t)$  pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/8$  du rotor.  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $d = 2$  mm, parois lisses.

#### C.2.4 Fluidification à contrainte de cisaillement imposée

Le protocole expérimental utilisé ici est le même qu’à taux de cisaillement imposé. Les étapes de pré-cisaillement à  $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$  et de mesure des modules viscoélastiques sont effectuées avant d’imposer une contrainte constante  $\sigma$  à l’échantillon. Comme on peut le voir sur les figures C.10(c) et C.9(c), la valeur de la contrainte demandée est atteinte dès le début de l’expérience et le temps de réponse du rhéomètre est négligeable. L’ensemble des réponses rhéologiques en taux de cisaillement pour différentes valeurs de contraintes imposées est rassemblé sur la figure C.8. Des mesures de champ de vitesse ont été effectuées en parallèle et les symboles vides sur la courbe à  $\sigma = 52$  Pa (courbe du bas) et à  $\sigma = 55$  Pa (courbe du haut) correspondent aux temps des profils montrés

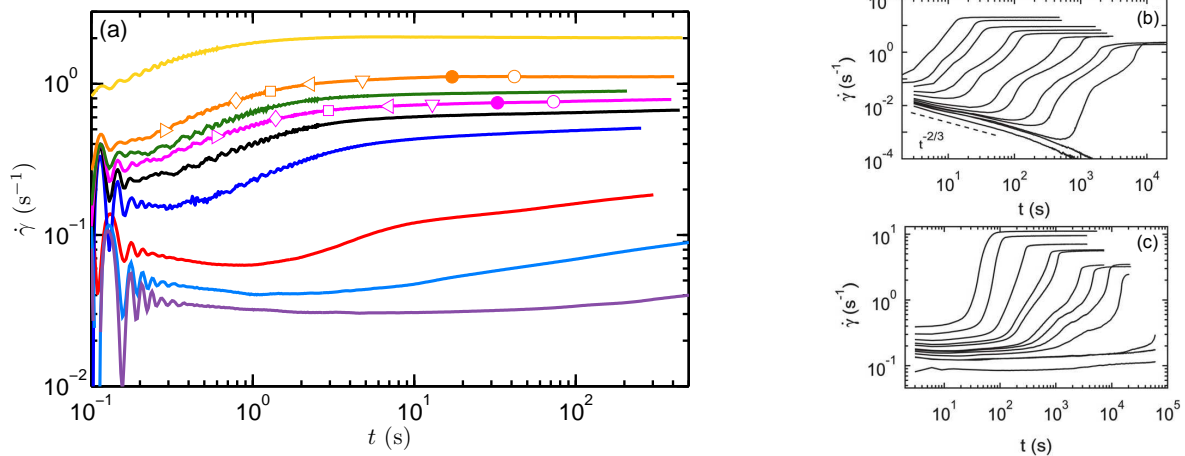


FIGURE C.8 – Réponse rhéologique d’une émulsion d’huile de PDMS dans de l’eau à une contrainte de cisaillement imposée. (a) Réponse en taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  pour des contraintes imposées de 35, 40, 45, 50, 51, 52, 53, 55 et 60 Pa de bas en haut. Les symboles correspondent aux différents temps des profils de vitesses mesurés pour l’expérience à  $\sigma = 52$  Pa de la figure C.10 et à  $\sigma = 55$  Pa de la figure C.9. (b) et (c) figures tirées de [Divoux et al., 2011a] illustrant la fluidification sous contrainte imposée d’un microgel de carbopol avec des conditions aux limites (b) rugueuses et (c) lisse.

sur les figures C.10 et C.9 respectivement. Alors que pour les expériences de fluage du carbopol avec des parois rugueuses on observe un régime primaire d’Andrade en  $\dot{\gamma} \sim t^{-2/3}$  [Fig.C.8(b)], l’évolution temporelle du taux de cisaillement de cette émulsion se rapproche plus des résultats de la figure C.8(c) obtenus avec des conditions aux bords lisses. Ce comportement rhéologique suggère que l’émulsion glisse dans un premier temps aux parois avant de se fluidifier complètement. Ce scénario est confirmé par la suite grâce la technique d’imagerie ultrasonore.

Tout d’abord, considérons l’expérience à  $\sigma = 55$  Pa pour laquelle la synchronisation entre la rhéologie et les mesures d’imagerie ultrasonore est présentée sur la figure C.9. On observe un comportement similaire à celui de la figure C.7 pour un taux de cisaillement imposé  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ . L’écoulement présente une coexistence solide-fluide transitoire caractérisée par l’apparition d’une bande de cisaillement proche du rotor en  $r = 0$  dont la taille augmente par érosion progressive de la bande solide proche du stator. Lorsque cette bande fluide a envahi l’ensemble de l’entrefer, l’émulsion est considérée comme totalement fluidifiée. On obtient alors un profil de vitesse quasiment linéaire. La comparaison de ces profils avec l’évolution du taux de cisaillement semble indiquer que la fluidification de l’émulsion correspond au temps où le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  atteint sa valeur stationnaire. Pour cette expérience à  $\sigma = 55$  Pa, on peut considérer que  $\tau_f \simeq 25$  s. On pourrait également considérer le point d’inflexion de  $\dot{\gamma}(t)$ . Toujours est-il que déterminer le temps de fluidification uniquement à partir des données rhéologiques semble délicat. Une analyse par imagerie ultrasonore est donc primordiale. Tournons-nous vers une expérience similaire à plus faible contrainte.

La synchronisation entre la rhéologie et les mesures d’imagerie ultrasonore pour une expérience à  $\sigma = 52$  Pa est présentée sur la figure C.10. À cette contrainte de cisaillement et pour une durée d’observation relativement courte d’environ 100 s, le

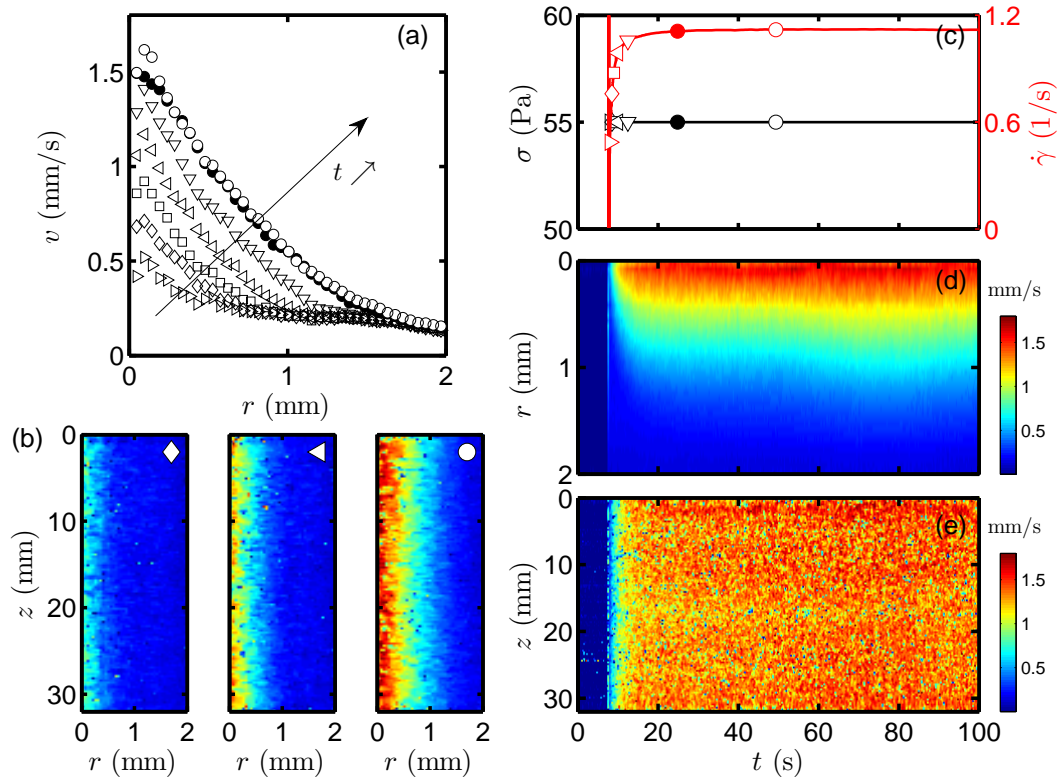


FIGURE C.9 – Fluidification d’une émulsion d’huile de PDMS dans de l’eau soumise à une contrainte de cisaillement  $\sigma = 55$  Pa. (a) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur  $z$  de la sonde à différents temps :  $t = 8,0$  ( $\triangleright$ ),  $8,5$  ( $\diamond$ ),  $9,0$  ( $\square$ ),  $10,0$  ( $\triangleleft$ ),  $12,5$  ( $\nabla$ ),  $25,0$  ( $\bullet$ ) et  $50,0$  s ( $\circ$ ). Le temps  $t = 0$  s correspond au début de l’acquisition des USV, l’expérience démarre à  $t = 7,7$  s. (b) Cartes du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués par les symboles en haut à droite de l’image. Chaque image correspond à une moyenne sur 20 tirs envoyés par séquences séparées de 1 s, la fréquence de répétition des tirs étant de 40 Hz. (c) Réponse en contrainte  $\sigma(t)$  et taux de cisaillement  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre, enregistrés simultanément et synchronisés en temps avec les images de vitesse. Les symboles indiquent les temps correspondant aux profils et aux images de vitesse montrées en (a) (b). (d) et (e) Diagrammes spatio-temporels de la vitesse  $\langle v(r, t) \rangle_z$  et de  $v(r_0, z, t)$  pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/8$  du rotor.  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $d = 2$  mm, parois lisses.

scénario est le suivant. Après un court régime transitoire où l’échantillon glisse aux parois, dès  $t \simeq 7,6$  s, l’émulsion commence à se fluidifier au niveau du rotor en  $r = 0$  et une bande cisailée émerge dans cette zone et coexiste avec une zone non cisailée proche du stator dont la limite se définit par la rupture de pente dans le profil de vitesse. De  $t \simeq 7,6$  s à  $t \simeq 40$  s, la taille de cette bande augmente et l’émulsion se fluidifie progressivement par érosion de la zone fluide proche du rotor vers la zone solide proche du stator. Mais contrairement à l’expérience à  $\sigma = 55$  Pa, la bande cisailée n’envahit pas l’ensemble de l’entrefer mais s’arrête environ à la moitié de l’entrefer. En effet à partir de  $t \simeq 50$  s, le profil de vitesse n’évolue plus jusqu’à la fin de l’expérience. A-t-on alors atteint l’état permanent ? Existe-t-il réellement une bande de cisaillement stationnaire à faible contrainte comme Muller [2008] ont pu l’observer ? Pour répondre à ces questions, il faudrait poursuivre nos investigations sur ce système en réalisant des



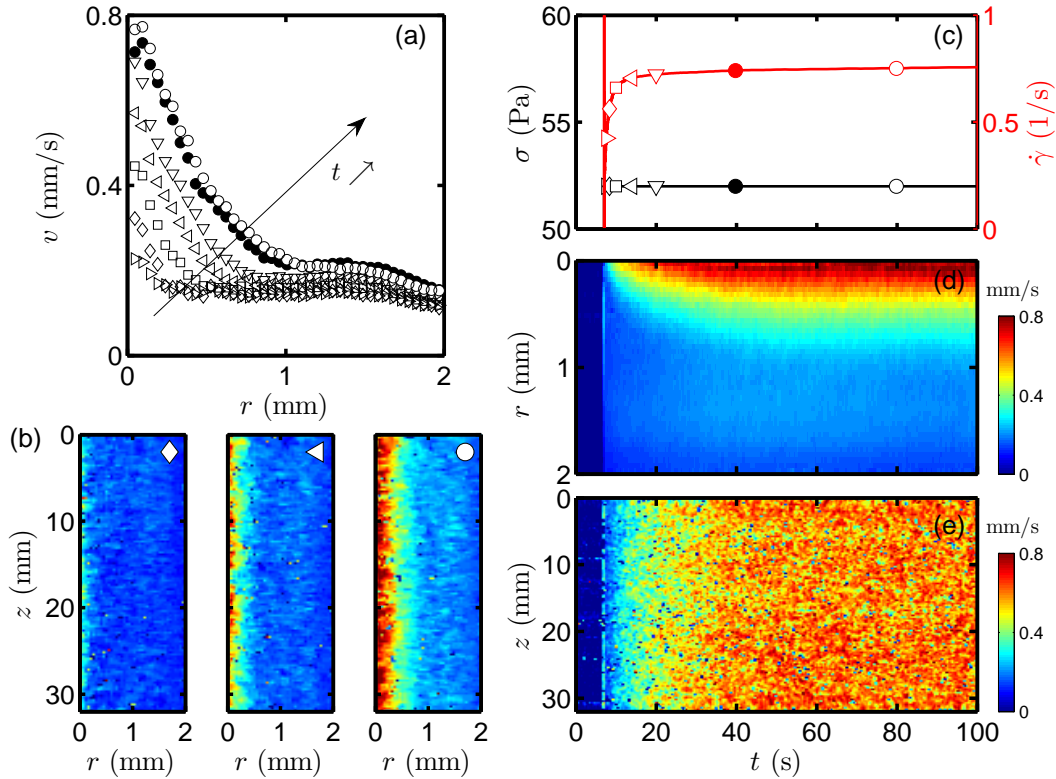


FIGURE C.10 – Fluidification d’une émulsion d’huile de PDMS dans de l’eau soumise à une contrainte de cisaillement  $\sigma = 52$  Pa. (a) Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur  $z$  de la sonde à différents temps :  $t = 7,6$  ( $\triangleright$ ),  $8,4$  ( $\diamond$ ),  $10$  ( $\square$ ),  $14$  ( $\triangleleft$ ),  $20$  ( $\nabla$ ),  $40$  ( $\bullet$ ) et  $80$  s ( $\circ$ ). Le temps  $t = 0$  s correspond au début de l’acquisition des USV, l’expérience démarre à  $t = 7,0$  s. (b) Cartographies du champ de vitesse  $v(r, z, t)$  à différents temps  $t$  indiqués par les symboles en haut à droite de l’image. Chaque image correspond à une moyenne sur 20 tirs envoyés par séquences séparées de 1 s, la fréquence de répétition des tirs étant de 25 Hz. (c) Signaux de réponse en contrainte  $\sigma(t)$  et de  $\dot{\gamma}(t)$  imposé par le rhéomètre, enregistrés simultanément et synchronisés en temps avec les images de vitesse. Les symboles indiquent les temps correspondants aux images de vitesse montrées en (a). (d) et (e) Diagrammes spatio-temporels de la vitesse  $\langle v(r, t) \rangle_z$  et de  $v(r_0, z, t)$  pour une position  $r_0 \simeq R_i + d/8$  du rotor.  $T = 25^\circ\text{C}$ ,  $d = 2$  mm, parois lisses.

expériences plus longues. À ce stade, les expériences à faible contrainte n’ont pas été effectuées sur une durée supérieure à une heure, mais il semblerait que sur cette durée, la bande de cisaillement reste stationnaire et que sa taille finale diminue avec  $\sigma$ .

La figure C.11 illustre les profils de vitesse adimensionnés par la vitesse maximale du fluide au niveau du rotor et mesurés dans l’état « stationnaire » par la technique d’imagerie ultrasonore pour quatre valeurs de contrainte de cisaillement imposée par le rhéomètre. Pour des contraintes,  $\sigma = 55$  et  $60$  Pa, le profil à la fin de l’expérience (à  $t = 100$  et  $200$  s) est linéaire et on peut considérer que l’ensemble de l’échantillon est fluidifié. En revanche les profils mesurés à plus faible contrainte,  $\sigma = 52$  et  $42$  Pa, montrent trois bandes, deux bandes cisailées au voisinage du rotor et au voisinage du stator et une bande non cisailée au milieu de l’entrefer, qui persistent encore après respectivement 320 et 1600 s. Cette coexistence est-elle due à un problème de glisse-

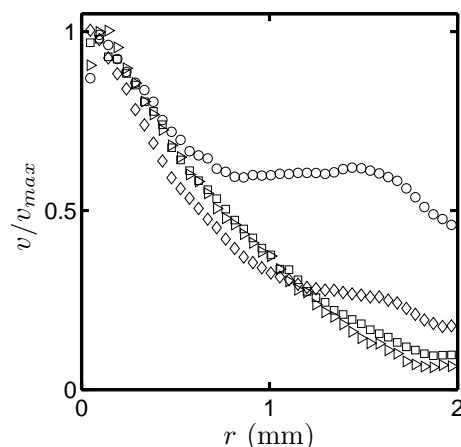


FIGURE C.11 – **Imagerie ultrasonore de l'état « stationnaire » d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau soumise à différentes contraintes de cisaillement.** Profils de vitesse  $\langle v(r, z, t) \rangle_z$  moyennés sur toute la hauteur  $z$  de la sonde dans l'état « stationnaire » et normalisés par la vitesse  $v_{max}$  au voisinage du rotor pour différentes contraintes de cisaillement appliquées :  $\sigma = 45$  Pa ( $\circ$ ),  $\sigma = 52$  Pa ( $\diamond$ ),  $\sigma = 55$  Pa ( $\square$ ) et  $\sigma = 60$  Pa ( $\triangleright$ ). Les profils sont moyennés sur 20 tirs consécutifs respectivement à un instant  $t = 1600, 320, 200,$  et  $100$  s après le début de l'expérience.

ment aux parois qui semble plus important à faible contrainte qu'à forte contrainte et disparaîtra-t-elle en utilisant des conditions aux bords rugueuses ? Persistera-t-elle sur des durées d'acquisition infinies ou faut-il attendre suffisamment longtemps pour observer une fluidification totale de l'échantillon ?<sup>4</sup> Toutes ces questions restent ouvertes pour l'instant et demandent à être testées par des expériences supplémentaires.

En conclusion, ces expériences préliminaires sont encourageantes et incitent à mener une étude plus approfondie sur cette émulsion en accumulant plus de statistique et en réalisant des expériences avec un temps d'acquisition plus grand.

---

4. Les durées d'acquisition ici restent faibles devant celles des expériences de fluage sur le microgel de carbopol effectuées par Divoux et al. [2011a] qui peuvent atteindre plus de 20 000 s avec des conditions aux bords lisses.



# Table des figures

1.1	Comportement d'un fluide viscoélastique. . . . .	21
1.2	Rhéologie extensionnelle d'une boule de silly putty soumise à son propre poids. . . . .	21
1.3	Écoulement de la matière. . . . .	22
1.4	Schéma d'un cisaillement simple . . . . .	23
1.5	Géométries classiques pour un rhéomètre rotatif. . . . .	24
1.6	Courbes d'écoulement pour différents types de fluides. . . . .	26
1.7	Courbes d'écoulement typiques de fluides à seuil. . . . .	26
1.8	Comportement hystérétique et thixotropie. . . . .	29
1.9	Modèle de Maxwell pour un fluide viscoélastique. . . . .	31
1.10	Diverses expériences montrant les effets élastiques. . . . .	32
1.11	Tableau récapitulatif des différentes géométries utilisées pour cisailer un fluide. . . . .	33
1.12	Exemples d'écoulements hétérogènes. . . . .	35
1.13	Phénomène de bandes de cisaillement. . . . .	36
2.1	Présentation du montage expérimental. . . . .	42
2.2	Signaux de speckle bruts et corrigés. . . . .	44
2.3	Signaux de speckle après formation de voie. . . . .	46
2.4	Images de déplacement. . . . .	48
2.5	Profils de vitesse axiale. . . . .	49
2.6	Profils de vitesse tangentielle. . . . .	50
3.1	Transition vers le régime laminaire d'une suspension newtonienne de billes de verre creuses dans de l'eau. . . . .	57
3.2	Rhéo-épaississement apparent de l'eau : signature d'une instabilité de l'écoulement. . . . .	58
3.3	Instabilité de Taylor-Couette. . . . .	60
3.4	Visualisation directe de la transition d'un écoulement laminaire vers un écoulement avec rouleaux de Taylor. . . . .	61
3.5	Transition vers un écoulement avec rouleaux d'une suspension Newtonienne de billes de verre creuses dans de l'eau. . . . .	62
3.6	Instabilité de Taylor secondaire : Wavy Vortex Flow (WVF). . . . .	64
3.7	Transition de la première vers la seconde instabilité de Taylor Couette. . . . .	64
3.8	Rouleaux contra-rotatifs et longueur d'onde de l'instabilité de Taylor-Couette. . . . .	65

3.9	Bifurcation supercritique entre l'écoulement de Couette (CF) et l'écoulement des rouleaux de Taylor (TVF). . . . .	66
3.10	Schéma de relation entre $v_{y+}$ et $v_\theta$ et $v_r$ . . . . .	67
3.11	Analyse des rouleaux de Taylor inertiels (TVF) dans de l'eau. . . . .	68
3.12	Instabilités observées dans une cellule de Taylor-Couette. . . . .	69
4.1	Rhéologie d'une solution de PAAM à T=12°C. . . . .	74
4.2	Diagramme spatio-temporel montrant le passage par différents états d'une solution de PAAM à T=12°C en appliquant une rampe linéaire montante puis descendante entre $\dot{\gamma} = 0$ et $20 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	76
4.3	Annihilation et création de diwhirls stables à l'aide de trempes en taux de cisaillement pour une solution de PAAM à T=12°C. . . . .	77
4.4	Comparaison entre la forme d'un diwhirl et d'une paire de rouleaux contra-rotatifs typique de TVF. . . . .	79
4.5	Analyse des diwhirls dans une solution de PAAM à T=12°C. . . . .	80
4.6	Évolution de la composante radiale de la vitesse $v_r(r_0, z)$ en fonction de la position verticale $z$ . . . . .	81
4.7	Comparaison entre les résultats d'analyse de stabilité linéaire pour un fluide newtonien et pour une solution de polymère. . . . .	83
4.8	Développement de la turbulence dans une solution de PAAM à T=12°C. . . . .	84
4.9	Route vers la turbulence dans une solution de PAAM à T=12°C. . . . .	85
4.10	Résolution de la turbulence dans une solution de PAAM à T=12°C soumis à un écoulement à cisaillement imposé à $\dot{\gamma} = 45 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	87
5.1	Des atomes aux structures micellaires dans des systèmes de tensioactifs. . . . .	91
5.2	Comportement d'une solution micellaire présentant des bandes de cisaillement. . . . .	94
5.3	Observation par biréfringence du phénomène de bandes de cisaillement. . . . .	95
5.4	Observation de la diffusion de la lumière d'une nappe laser radiale par une solution de CTAB-NaNO <sub>3</sub> . . . . .	96
5.5	Courbes de rhéologie standard d'une solution semi-diluée de micelles géantes. . . . .	97
5.6	États stationnaires à différents taux de cisaillement d'une solution semi-diluée de micelles géantes. . . . .	98
5.7	Analyse des profils de vitesses moyennés dans le temps et dans l'espace dans le régime de bandes de cisaillement. . . . .	100
5.8	Agrandissements d'images de vitesses moyennées en temps, enregistrées dans le régime des bandes de cisaillement. . . . .	101
5.9	Établissement des bandes de cisaillement et de l'instabilité élastique après l'application d'un saut en taux de cisaillement de $\dot{\gamma} = 0$ à $\dot{\gamma} = 50 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	104
5.10	Dynamiques spatio-temporelle d'écoulements secondaires obtenus à partir de la position de l'interface entre les deux bandes de cisaillement après l'application de saut en taux de cisaillement. . . . .	105
5.11	Diagramme spatio-temporel de la vitesse $v(r_0, z, t)$ à différents taux de cisaillement. . . . .	106

5.12	Turbulence élastique à $\dot{\gamma} = 140 \text{ s}^{-1}$ visualisée sur une courte durée de 2,5 s enregistrée 63 s après la mise en écoulement. . . . .	107
5.13	Courbes d'écoulement adimensionnées de la solution micellaire : CTAB-NaNO <sub>3</sub> (0,1-0,3 M). . . . .	109
5.14	Rhéologie linéaire de la solution micellaire : CTAB-NaNO <sub>3</sub> (0,1-0,3 M). . . . .	110
5.15	Nombre de Weissenberg. . . . .	111
5.16	Diagrammes spatio-temporels montrant le passage par différents états de la solution micellaire : CTAB-NaNO <sub>3</sub> (0,1-0,3 M) en appliquant une rampe linéaire montante puis descendante en taux de cisaillement entre $\dot{\gamma}=950$ et $1500 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	112
5.17	Comparaison des bifurcations CF→TVF dans de l'eau et CF→SV de la solution micellaire : CTAB-NaNO <sub>3</sub> (0,1-0,3 M). . . . .	113
5.18	Comparaison de la forme des rouleaux dans de l'eau et de la solution micellaire : CTAB-NaNO <sub>3</sub> (0,1-0,3 M). . . . .	114
5.19	Diagrammes spatio-temporel de l'écoulement soumis à un taux de cisaillement constant $\dot{\gamma} = 1500 \text{ s}^{-1}$ pour la solution micellaire : CTAB-NaNO <sub>3</sub> (0,1-0,3 M). . . . .	115
5.20	Courbe d'écoulement d'une solution diluée de micelles générant des structures induites par cisaillement. . . . .	117
5.21	Courbe d'écoulement modèle d'une solution diluée de micelles générant des structures induites par cisaillement. . . . .	117
5.22	Dynamiques spatio-temporelles du CTAT. . . . .	121
5.23	Temps de nucléation de l'instabilité inertielle $\tau_{VF}$ (●), des structures induites sous cisaillement $\tau_{SIS}$ (■) et de l'instabilité élastique $\tau_{ET}$ (◆) en fonction du taux de cisaillement pour une solution de CTAT. . . . .	122
5.24	Diagramme de stabilité du CTAT : $T(^{\circ}\text{C})$ en fonction de $\dot{\gamma} (\text{s}^{-1})$ . . . . .	124
6.1	Bilan sur les comportements observés dans les différents systèmes étudiés dans la partie II. . . . .	126
7.1	Courbes d'écoulement et profils de vitesse pour différents types de fluides complexes. . . . .	130
7.2	Visualisation et composition d'un gel de noir de carbone. . . . .	131
7.3	Effondrement d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 1 \%$ . . . . .	133
7.4	Rhéologie linéaire et non linéaire de gels de noir de carbone. . . . .	134
7.5	Expérience de rampe en amplitude $\sigma_0$ de la contrainte oscillante illustrant la fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration $C=6\%$ à une fréquence $f_0 = 1 \text{ Hz}$ . . . . .	141
7.6	Expérience de LAOS-Stress résolue en temps illustrant la fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 6\%$ pour une amplitude constante de contrainte oscillante $\sigma_0 = 11 \text{ Pa}$ et une fréquence $f_0 = 1 \text{ Hz}$ . . . . .	143
7.7	Rhéologie par transformée de Fourier pour l'expérience en LAOS-Stress de la figure 7.6 au temps $t = 16087 \text{ s}$ . . . . .	145
7.8	Évolution temporelle de taux de distorsion harmonique . . . . .	146
7.9	Courbes de Lissajous instantanées . . . . .	147
7.10	Évolution temporelle des coefficients (a) $J'_L$ , (b) $J'_M$ , (c) $\phi'_L$ , et (d) $\phi'_M$ . . . . .	149

7.11	Évolution temporelle de R et Q. . . . .	150
7.12	Imagerie ultrasonore d'un gel de noir de carbone à 6% pour une contrainte oscillante d'amplitude $\sigma_0 = 11$ Pa constante et à $f_0 = 1$ Hz. . . . .	151
7.13	Évolution temporelle du champ de déplacement au cours de la fluidification du gel de noir de carbone. . . . .	152
7.14	Diagramme de Pipkin de la réponse temporelle d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 6\%$ soumis à des expériences de LAOS-Stress. . . . .	155
7.15	Comparaison rhéologique des scénarii de fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 6\%$ à faible contrainte et contrainte élevée pour une fréquence d'oscillation $f_0 = 1$ Hz. . . . .	156
7.16	Comparaison par imagerie ultrasonore des scénarii de fluidification d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 6\%$ , (a) à faible contrainte et (b) à contrainte élevée pour une fréquence d'oscillation $f_0 = 1$ Hz. . . . .	158
7.17	Diagramme d'état dynamique du processus de fatigue d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 6\%$ soumis à une contrainte oscillante d'amplitude $\sigma_0$ et de fréquence $f_0 = 1$ Hz. . . . .	159
7.18	Figure adaptée de [Lindström et al., 2012b] illustrant la fluidification d'un gel colloïdal. . . . .	161
7.19	Évolution temporelle des données rhéologiques d'un gel de noir de carbone de concentration $C = 6\%$ soumis à une contrainte oscillante d'amplitude $\sigma_0 = 20$ Pa et de fréquence $f_0 = 1$ Hz dans une géométrie cône-plan. . . . .	163
7.20	Évolution des paramètres $\sigma_1$ , $\sigma_2$ et $\langle N_1 \rangle$ en fonction de la fréquence d'oscillation $f$ . . . . .	164
8.1	Composition d'une micelle et d'une sous-micelle de caséine. . . . .	169
8.2	Processus de gélification d'un gel de caséine de concentration 4%ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. . . . .	172
8.3	Hydrolyse de la glucono- $\delta$ -lactone en acide gluconique. . . . .	172
8.4	Visualisation microscopique de la prise d'un gel de caséine. . . . .	173
8.5	Rhéologie linéaire d'un gel de caséine de concentration 4%ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. . . . .	174
8.6	Fluage d'Andrade d'un gel de caséine de concentration 4%ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. . . . .	175
8.7	Fluage d'Andrade d'un gel de caséine de concentration 4%ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. . . . .	176
8.8	Temps de rupture d'un gel de caséine de concentration 4%ensemencé par 3% de sphères de polyamide et acidifié avec 1% de GDL. . . . .	177
8.9	Représentation des trois régimes de fluage d'un gel de caséine et comparaison avec le fluage d'un gel de noir de carbone. . . . .	179
8.10	Comparaison entre visualisation directe et imagerie ultrasonore de la rupture d'un gel de caséine. . . . .	180
8.11	Evolution du temps $\tau_{min}$ d'un gel de caséine et comparaison avec un gel de noir de carbone. . . . .	181
8.12	D'une déformation homogène du gel à la croissance des fractures. . . . .	181

B.1	Diagrammes spatio-temporels synchronisés montrant le passage par différents états d'une solution de HPAm de concentration 0,4% à T=20°C en appliquant une rampe linéaire montante puis descendante en taux de cisaillement entre $\dot{\gamma}=1$ et $1000 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	196
C.1	Fluidification d'un microgel de carbopol. . . . .	197
C.2	Microstructure d'un gel de carbopol. . . . .	198
C.3	Fluidification d'un microgel de carbopol de concentration 1% en masse soumis à un taux de cisaillement $\dot{\gamma} = 3 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	199
C.4	Rhéologie linéaire d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau. . . . .	202
C.5	Courbe d'écoulement d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau. . . . .	203
C.6	Réponse rhéologique d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau à un taux de cisaillement imposé. . . . .	204
C.7	Fluidification d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau soumis à un taux de cisaillement $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	205
C.8	Réponse rhéologique d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau à une contrainte de cisaillement imposée. . . . .	206
C.9	Fluidification d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau soumis à une contrainte de cisaillement $\sigma = 55 \text{ Pa}$ . . . . .	207
C.10	Fluidification d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau soumis à une contrainte de cisaillement $\sigma = 52 \text{ Pa}$ . . . . .	208
C.11	Fluidification d'une émulsion d'huile de PDMS dans de l'eau soumis à une contrainte de cisaillement $\sigma = 52 \text{ Pa}$ . . . . .	209





# Bibliographie

- Andereck, D., Liu, S., et Swinney, H. (1986). Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *J. Fluid Mech.*, **164**, 155–183.
- Andrade, E. N. d. C. (1910). On the viscous flow in metals, and allied phenomena. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, **84**, 1–12.
- Aronson, M. P. (1989). The role of free surfactant in destabilizing oil-in-water emulsions. *Langmuir*, **5**, 494–501.
- Asakura, S. et Oosawa, F. (1958). Interaction between particles suspended in solutions of macromolecules. *Journal of Polymer Science*, **33**, 183–192.
- Basquin, O. (1910). The exponential law of endurance tests. *Proc. ASTM*, **10**, 625–630.
- Baudonnet, L., Grossiord, J.-L., et Rodriguez, F. (2004). Effect of dispersion stirring speed on the particle size distribution and rheological properties of three carbomers. *J. Dispersion Sci. Technol.*, **25**, 183–192.
- Baumberger, T., Caroli, C., et Martina, D. (2006). Solvent control of crack dynamics in a reversible hydrogel. *Nature Materials*, **5**, 552–555.
- Bécu, L., Anache, D., Manneville, S., et Colin, A. (2007). Evidence for three-dimensional unstable flows in shear-banding wormlike micelles. *Phys. Rev. E*, **76**, 011503.
- Bécu, L., Manneville, S., et Colin, A. (2004). Spatio-temporal dynamics of wormlike micelles under shear. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 018301.
- Bell, G. (1978). Models for the specific adhesion of cells to cells. *Science*, **200**, 618–627.
- Berret, J.-F. (2005). *Rheology of wormlike micelles : equilibrium properties and shear banding transition*, 667–720. Springer Netherlands.
- Berret, J.-F., Lerouge, S., et Decruppe, J.-P. (2002). Kinetics of the shear-thickening transition observed in dilute surfactant solutions and investigated by flow birefringence. *Langmuir*, **18**, 7279–7286.
- Besseling, R., Isa, L., Ballesta, P., Petekidis, G., Cates, M. E., et Poon, W. C. K. (2010). Shear banding and flow-concentration coupling in colloidal glasses. *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 268301.

- Boger, D. et Walters, K. (1993). *Rheological Phenomena in Focus*. Rheology Series. Elsevier Science.
- Boltenhagen, P., Hu, Y., Matthys, E., et Pine, D. (1997a). Inhomogeneous structure formation and shear-thickening in worm-like micellar solutions. *Europhys. Lett.*, **38**, 389 – 394.
- Boltenhagen, P., Hu, Y., Matthys, E. F., et Pine, D. J. (1997b). Inhomogeneous structure formation and shear-thickening in worm-like micellar solutions. *EPL (Europhysics Letters)*, **38**, 389.
- Bond, T. et Bergstrom, R. (2006). Light absorption by carbonaceous particles : An investigative review. *Aerosol Science and Technology*, **40**, 27–67.
- Bonn, D., Kellay, H., Prochnow, M., Ben-Djemaa, K., et Meunier, J. (1998). Delayed fracture of an inhomogeneous soft solid. *Science*, **280**, 265–267.
- Boukany, P. E., Hemminger, O., Wang, S.-Q., et Lee, L. J. (2010). Molecular imaging of slip in entangled dna solution. *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 027802.
- Callaghan, P. T. (2008). Rheo nmr and shear banding. *Rheol. Acta*, **47**, 243–255.
- Cappelaere, E., Berret, J.-F., Decruppe, J.-P., Cressely, R., et Lindner, P. (1997a). Rheology, birefringence, and small-angle neutron scattering in a charged micellar system : Evidence of a shear-induced phase transition. *Phys. Rev. E*, **56**, 1869–1878.
- Cappelaere, E., Berret, J. F., Decruppe, J. P., Cressely, R., et Lindner, P. (1997b). Rheology, birefringence, and small-angle neutron scattering in a charged micellar system : Evidence of a shear-induced phase transition. *Phys. Rev. E*, **56**, 1869–1878.
- Cates, M. et Fielding, S. (2006). Rheology of giant micelles. *Advances in Physics*, **55**, 799–879.
- Chandrasekhar, S. (1961). *Hydrodynamic and hydromagnetic stability*. Dover Publications.
- Cho, K. S. (2005). A geometrical interpretation of large amplitude oscillatory shear response. *J. Rheol.*, **49**, 747–758.
- Chylek, P., Videen, G., Ngo, D., Pinnick, R. G., et Klett, J. D. (1995). Effect of black carbon on the optical-properties and climate forcing of sulfate aerosols. *Journal of Geophysical Research-atmospheres*, **100**, 16325–16332.
- Cloitre, M., Borrega, R., et Leibler, L. (2000). Rheological aging and rejuvenation in microgel pastes. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 4819–4822.
- Cloitre, M., Borrega, R., Monti, F., et Leibler, L. (2003). Glassy dynamics and flow properties of soft colloidal pastes. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 068303.
- Couette, M. (1888). Sur un nouvel appareil pour l'Étude du frottement des fluides.

- Coussot, P., Nguyen, Q. D., Huynh, H. T., et Bonn, D. (2002). Avalanche behavior in yield stress fluids. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 175501.
- Coussot, P. et Ovarlez, G. (2010). Physical origin of shear-banding in jammed systems. *Eur. Phys. J. E*, **33**, 183–188.
- Coussot, P., Tocquer, L., Lanos, C., et Ovarlez, G. (2009). Macroscopic vs. local rheology of yield stress fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **158**, 85–90.
- de Gennes, P. (1992). Soft matter (nobel lecture). *Angewandte Chemie International Edition in English*, **31**, 842–845.
- de Gennes, P. G. (1979). *Scaling Concepts in Polymer Physics*. Cornell University Press.
- Dickinson, E. (2006). Colloid science of mixed ingredients. *Soft Matter*, **2**, 642–652.
- Dickinson, E. et Merino, L. M. (2002). Effect of sugars on the rheological properties of acid caseinate-stabilized emulsion gels. *Food Hydrocolloids*, **16**, 321–331.
- Dimitriou, C. J. (2013). *The rheological complexity of waxy crude oils : Yielding, thixotropy and shear heterogeneities*. PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology.
- Divoux, T., Barentin, C., et Manneville, S. (2011a). From stress-induced fluidization processes to herschel-bulkley behaviour in simple yield stress fluids. *Soft Matter*, **7**, 8409–8418.
- Divoux, T., Barentin, C., et Manneville, S. (2011b). Stress overshoot in a simple yield stress fluid : an extensive study combining rheology and velocimetry. *Soft Matter*, **7**, 9335–9349.
- Divoux, T., Grenard, V., et Manneville, S. (2013). Rheological hysteresis in soft glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 018304.
- Divoux, T., Tamarii, D., Barentin, C., et Manneville, S. (2010). Transient shear banding in a simple yield stress fluid. *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 208301.
- Divoux, T., Tamarii, D., Barentin, C., Teitel, S., et Manneville, S. (2012). Yielding dynamics of a herschel-bulkley fluid : a critical-like fluidization behaviour. *Soft Matter*, **8**, 4151–4164.
- Dominguez-Lerma, M. A., Cannell, D. S., et Ahlers, G. (1986). Eckhaus boundary and wave-number selection in rotating couette-taylor flow. *Phys. Rev. A*, **34**, 4956–4970.
- Donnelly, R. et Fultz, D. (1960). Experiments on the stability of viscous flow between rotating cylinders. ii. visual observations. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **258**, 101–123.
- Dorfman, K. D., King, S. B., Olson, D. W., Thomas, J. D., et Tree, D. R. (2012). Beyond gel electrophoresis : Microfluidic separations, fluorescence burst analysis, and dna stretching. *Chemical reviews*, **113**, 2584–2667.

- Dutcher, C. S. et Muller, S. J. (2013). Effects of moderate elasticity on the stability of co-and counter-rotating taylor-couette flows. *J. Rheol.*, **57**, 791.
- Eckhardt, B., Grossmann, S., et Lohse, D. (2007). What rayleigh-bénard, taylor-couette and pipe flows have in common. *Progress in Turbulence II*, 3–10.
- Ehrburger-Dolle, F., Misono, S., et Lahaye, J. (1990). Characterization of the aggregate void structure of carbon blacks by thermoporometry. *J. Colloid Interface Sci.*, **135**, 468–485.
- Evans, E. et Ritchie, K. (1997). Dynamic strength of molecular adhesion bonds. *Biophys. J.*, **72**, 1541–1555.
- Ewoldt, R. H., Hosoi, A. E., et McKinley, G. H. (2008). New measures for characterizing nonlinear viscoelasticity in large amplitude oscillatory shear. *J. Rheol.*, **52**, 1427–1458.
- Fall, A., Lemaitre, A., Bertrand, F., Bonn, D., et Ovarlez, G. (2010). Shear thickening and migration in granular suspensions. *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 268303.
- Fardin, M., Ober, T., Gay, C., Grégoire, G., McKinley, G., et Lerouge, S. (2011). Criterion for purely elastic taylor-couette instability in the flows of shear-banding fluids. *Europhys. Lett.*, **96**, 44004.
- Fardin, M.-A., Divoux, T., Guedeau-Boudeville, M.-A., Buchet-Maulien, I., Browaeys, J., McKinley, G. H., Manneville, S., et Lerouge, S. (2012a). Shear-banding in surfactant wormlike micelles : elastic instabilities and wall slip. *Soft Matter*, **8**, 2535–2553.
- Fardin, M.-A., Lasne, B., Cardoso, O., Grégoire, G., Argentina, M., Decruppe, J.-P., et Lerouge, S. (2009). Taylor-like vortices in shear-banding flow of giant micelles. *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 028302.
- Fardin, M.-A. et Lerouge, S. (2012). Instabilities in wormlike micelle systems : From shear-banding to elastic turbulence. *Eur. Phys. J. E*, **35**, 9767.
- Fardin, M.-A., Lerouge, S., Argentina, M., Grégoire, G., et Cardoso, O. (2008). Interface dynamics in shear-banding flow of giant micelles. *Soft Matter*, **4**, 1808–1819.
- Fardin, M.-A., Lopez, D., Croso, J., Grégoire, G., Cardoso, O., McKinley, G. H., et Lerouge, S. (2010). Elastic turbulence in shear banding wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 178303.
- Fardin, M.-A., Ober, T. J., Grenard, V., Divoux, T., Manneville, S., McKinley, G. H., et Lerouge, S. (2012b). Interplay between elastic instabilities and shear-banding : three categories of taylor-couette flows and beyond. *Soft Matter*, **8**, 10072–10089.
- Fardin, M. A., Perge, C., et Taberlet, N. (2014a). "the hydrogen atom of fluid dynamics" - introduction to the taylor-couette flow for soft matter scientists. *Soft Matter*, **10**, 3523–3535.

- Fardin, M. A., Perge, C., Taberlet, N., et Manneville, S. (2014b). Flow-induced structures versus flow instabilities. *Phys. Rev. E*, **89**, 011001.
- Fenstermacher, P., Swinney, H. L., et Gollub, J. (1979). Dynamical instabilities and the transition to chaotic Taylor vortex flow. *J. Fluid Mech.*, **94**, 103–128.
- Fischer, E. et Callaghan, P. T. (2000). Is a birefringence band a shear band? *EPL (Europhysics Letters)*, **50**, 803.
- Gallot, T., Perge, C., Grenard, V., Fardin, M.-A., Taberlet, N., et Manneville, S. (2013). Ultrafast ultrasonic imaging coupled to rheometry : Principle and illustration. *Rev. Sci. Instrum.*, **84**, 045107.
- Gamez-Corrales, R., Berret, J.-F., Walker, L., et Oberdisse, J. (1999). Shear-thickening dilute surfactant solutions : the equilibrium structure as studied by small-angle neutron scattering. *Langmuir*, **15**, 6755 – 6763.
- Gardel, M. L., Shin, J. H., MacKintosh, F. C., Mahadevan, L., Matsudaira, P., et Weitz, D. A. (2004). Elastic behavior of cross-linked and bundled actin networks. *Science*, **304**, 1301–1305.
- Gauthier, G., Gondret, P., Moisy, F., et Rabaud, M. (2002). Instabilities in the flow between co-and counter-rotating disks. *Journal of Fluid Mechanics*, **473**, 1–21.
- Gibaud, T., Barentin, C., et Manneville, S. (2008). Influence of boundary conditions on yielding in a soft glassy material. *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 258302.
- Gibaud, T., Barentin, C., Taberlet, N., et Manneville, S. (2009). Shear-induced fragmentation of laponite suspensions. *Soft Matter*, **5**, 3026–3037.
- Gibaud, T., Frelat, D., et Manneville, S. (2010). Heterogeneous yielding dynamics in a colloidal gel. *Soft Matter*, **6**, 3482–3488.
- Gibaud, T., Mahmoudi, N., Oberdisse, J., Lindner, P., Pedersen, J. S., Oliveira, C. L. P., Stradner, A., et Cardinaux, F. (2012). New routes to food gels and glasses. *Faraday Discuss.*, **158**, 267–284.
- Gobeaux, F., Belamie, E., Mosser, G., Davidson, P., et Asnacios, S. (2010). Power law rheology and strain-induced yielding in acidic solutions of type I-collagen. *Soft Matter*, **6**, 3769–3777.
- Gopalakrishnan, V. et Zukoski, C. F. (2007). Delayed flow in thermo-reversible colloidal gels. *J. Rheol.*, **51**, 623–644.
- Goyon, J., Colin, A., Ovarlez, G., Ajdari, A., et Bocquet, L. (2008). Spatial cooperativity in soft glassy flows. *Nature*, **454**, 84–87.
- Graham, M. D. (1995). Wall slip and the nonlinear dynamics of large amplitude oscillatory shear flows. *J. Rheol.*, **39**, 697–712.

- Grenard, V., Divoux, T., Taberlet, N., et Manneville, S. (2014). Timescales in creep and yielding of attractive gels. *Soft Matter*, **10**, 1555–1571.
- Grinnell, F. et Petroll, W. M. (2010). Cell motility and mechanics in three-dimensional collagen matrices. *Annual Review of Cell and Developmental Biology*, **26**, 335–361. PMID : 19575667.
- Groisman, A. et Steinberg, V. (1996). Couette-taylor flow in a dilute polymer solution. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 1480–1483.
- Groisman, A. et Steinberg, V. (1997). Solitary vortex pairs in viscoelastic couette flow. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 1460.
- Groisman, A. et Steinberg, V. (1998a). Elastic vs . inertial instability in a polymer solution flow. *EPL (Europhysics Letters)*, **43**, 165.
- Groisman, A. et Steinberg, V. (1998b). Mechanism of elastic instability in couette flow of polymer solutions : Experiment. *Phys. Fluids*, **10**, 2451–2463.
- Groisman, A. et Steinberg, V. (2000). Elastic turbulence in a polymer solution flow. *Nature*, **405**, 53–55.
- Groisman, A. et Steinberg, V. (2004). Elastic turbulence in curvilinear flows of polymer solutions. *New Journal of Physics*, **6**, 29.
- Grossmann, S. (2000). The onset of shear flow turbulence. *Rev. Mod. Phys.*, **72**, 603.
- Gutowski, I., Lee, D., Bruyn, J., et Frisken, B. (2012). Scaling and mesostructure of carboxypol dispersions. *Rheologica Acta*, **51**, 441–450.
- Halasz, Z., Danku, Z., et Kun, F. (2012). Competition of strength and stress disorder in creep rupture. *Phys. Rev. E*, **85**, 016116.
- Hoffmann, H., Herb, C., et Prudhomme, R. (1994). *Structure and flow in surfactant solutions*, volume 578.
- Höhler, R. et Addad, S. C. (2005). Rheology of liquid foam. *J. Phys. : Condens. Matter*, **17**, 1041–1069.
- Hu, H., Boltenhagen, P., et Pine, D. (1998a). Shear thickening in low-concentration solutions of wormlike micelles : I. direct visualisation of transient behavior and phase transitions. *J. Rheol.*, **42**, 1185 – 1208.
- Hu, Y., Boltenhagen, P., Matthys, E. F., et Pine, D. J. (1998b). Shear thickening in low concentration solutions of wormlike micelles, slip, fracture, and stability of the shear-induced phase. *J. Rheol.*, **42**, 1209–1226.
- Hu, Y., Boltenhagen, P., et Pine, D. J. (1998c). Shear-thickening in low-concentration solutions of wormlike micelles. i. direct visualization of transient behavior and phase transitions. *J. Rheol.*, **42**, 1185–1208.

- Hu, Y. T. et Lips, A. (2005). Kinetics and mechanism of shear banding in an entangled micellar solution. *J. Rheol.*, **49**, 1001–1027.
- Hyun, K., Wilhelm, M., Klein, C. O., Cho, K. S., Nam, J. G., Ahn, K. H., Lee, S. J., Ewoldt, R. H., et McKinley, G. H. (2011). A review of nonlinear oscillatory shear tests : Analysis and application of large amplitude oscillatory shear (laos). *Prog. Polym. Sci.*, **36**, 1697–1753.
- Jager, K.-M. et McQueen, D. H. (2001). Fractal agglomerates and electrical conductivity in carbon black polymer composites. *Polymer*, **42**, 9575 – 9581.
- Jagla, E. A. (2011). Creep rupture of materials : Insights from a fiber bundle model with relaxation. *Phys. Rev. E*, **83**, 046119.
- Jaishankar, A. et McKinley, G. H. (2013). Power-law rheology in the bulk and at the interface : quasi-properties and fractional constitutive equations. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Science*, **469**.
- Jensen, J. A. (1996). *Estimation of Blood Velocities Using Ultrasound*. Cambridge University Press.
- Kadoma, I. A. et van Egmond, J. W. (1996). Tulip like scattering patterns in wormlike micelles under shear flow. *PRL*, **76**, 4432–4435.
- Kalab, M., M. H. (1983). Development of microstructure in set-style nonfat yoghurt. *Food Microstruct.*, **2**, 51–66.
- Katgert, G., Latka, A., Möbius, M. E., et van Hecke, M. (2009). Flow in linearly sheared two-dimensional foams : From bubble to bulk scale. *Phys. Rev. E*, **79**, 066318.
- Ketz, R. J., Prud'homme, R. K., et Graessley, W. W. (1988). Rheology of concentrated microgel solutions. *Rheol. Acta*, **27**, 531–539.
- Khaldoun, A., Eiser, E., Wegdam, G. H., et Bonn, D. (2005). Rheology : Liquefaction of quicksand under stress. *Nature*, **437**, 635–635.
- Kim, H. B., Hertzberg, J. R., et Shandas, R. (2004). Development and validation of echo piv. *Exp. Fluids*, **36**, 455–462.
- Kim, J.-Y., Song, J.-Y., Lee, E.-J., et Park, S.-K. (2003). Rheological properties and microstructures of carbopol gel network system. *Colloid Polym. Sci.*, **281**, 614–623.
- Klein, C. O., Spiess, H. W., Calin, A., Balan, C., et Wilhelm, M. (2007). Separation of the nonlinear oscillatory response into a superposition of linear, strain hardening, strain softening, and wall slip response. *Macromolecules*, **40**, 4250–4259.
- Koch, S., Schneider, T., et Küter, W. (1998). The velocity field of dilute cationic surfactant solutions in a couette-viscometer. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **78**, 47–59.



- Kohout, J. (2000). Temperature dependence of stress–lifetime fatigue curves. *Fatigue and Fracture of Engineering Materials and Structures*, **23**, 969–977.
- Kovacs, K., Nagy, S., Hidalgo, R. C., Kun, F., Herrmann, H. J., et Pagonabarraga, I. (2008). Critical ruptures in a bundle of slowly relaxing fibers. *Phys. Rev. E*, **77**, 036102.
- Kramers, H. (1940). Brownian motion in a field of force and the diffusion model of chemical reactions. *Physica*, **7**, 284 – 304.
- Kun, F., Carmona, H. A., Andrade, J. S., et Herrmann, H. J. (2008). Universality behind basquin s law of fatigue. *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 094301.
- Kun, F., Costa, M. H., Filho, R. N. C., Jr, J. S. A., Soares, J. B., Zapperi, S., et Herrmann, H. J. (2007). Fatigue failure of disordered materials. *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, **2007**, P02003.
- Lange, M. et Eckhardt, B. (2001). Vortex pairs in viscoelastic couette-taylor flow. *Phys. Rev. E*, **64**, 027301.
- Larson, R., Muller, S., et Shaqfeh, E. (1994a). The effect of fluid rheology on the elastic taylor-couette instability. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **51**, 195 – 225.
- Larson, R., Muller, S., et Shaqfeh, E. (1994b). The effect of fluid rheology on the elastic taylor-couette instability. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **51**, 195 – 225.
- Larson, R., Shaqfeh, E., et Mueller, S. (1990). A purely viscoelastic instability in taylor-couette flow. *J. Fluid Mech.*, **218**, 573–600.
- Laüger, J. et Stettin, H. (2010). Differences between stress and strain control in the non-linear behavior of complex fluids. *Rheol. Acta*, **49**, 909–930.
- Laurati, M., Egelhaaf, S. U., et Petekidis, G. (2011). Nonlinear rheology of colloidal gels with intermediate volume fraction. *J. Rheol.*, **55**, 673–706.
- Lee, D., Gutowski, I. A., Bailey, A. E., Rubatat, L., de Bruyn, J. R., et Frisken, B. J. (2011). Investigating the microstructure of a yield-stress fluid by light scattering. *Phys. Rev. E*, **83**, 031401.
- Leocmach, M., Perge, C., Divoux, T., et Manneville, S. (2014). Creep and brittle failure of a protein gel under stress. *arXiv preprint arXiv :1401.8234*.
- Lerouge, S., Argentina, M., et Decruppe, J. P. (2006a). Interface instability in shear-banding flow. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 088301.
- Lerouge, S., Argentina, M., et Decruppe, J.-P. (2006b). Interface instability in shear-banding flow. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 088301.
- Lerouge, S. et Berret, J.-F. (2010). Shear-induced transitions and instabilities in surfactant wormlike micelles. *Adv Polym Sci*, **230**, 1–71.

- Lerouge, S., Decruppe, J.-P., et Olmsted, P. (2004). Birefringence banding in a micellar solution or the complexity of heterogeneous flows. *Langmuir*, **20**, 11355–11365.
- Lettinga, M. P. et Manneville, S. (2009). Competition between shear banding and wall slip in wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 248302.
- Li, X., Wang, S.-Q., et Wang, X. (2009). Nonlinearity in large amplitude oscillatory shear (laos) of different viscoelastic materials. *J. Rheol.*, **53**, 1255–1274.
- Liberatore, M. W., Nettekheim, F., Wagner, N. J., et Porcar, L. (2006). Spatially resolved small-angle neutron scattering in the 1-2 plane : A study of shear-induced phase-separating wormlike micelles. *Phys. Rev. E*, **73**, 020504.
- Lindström, S. B., Kodger, T. E., Sprakel, J., et Weitz, D. A. (2012a). Structures, stresses, and fluctuations in the delayed failure of colloidal gels. *Soft Matter*, **8**, 3657–3664.
- Lindström, S. B., Kodger, T. E., Sprakel, J., et Weitz, D. A. (2012b). Structures, stresses, and fluctuations in the delayed failure of colloidal gels. *Soft Matter*, **8**, 3657–3664.
- Liu, A. J., Ramaswamy, S., Mason, T., Gang, H., et Weitz, D. (1996). Anomalous viscous loss in emulsions. *Physical review letters*, **76**, 3017–3020.
- López-González, M. R., Holmes, W. M., Callaghan, P. T., et Photinos, P. (2004). Shear banding fluctuations and nematic order in wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 268302.
- Lucey, J. et Singh, H. (1997). Formation and physical properties of acid milk gels : a review. *Food Research International*, **30**, 529 – 542.
- Lucey, J., van Vliet, T., Grolle, K., Geurts, T., et Walstra, P. (1997). Properties of acid casein gels made by acidification with glucono- $\delta$ -lactone. 1. rheological properties. *International Dairy Journal*, **7**, 381 – 388.
- Mabille, C., Schmitt, V., Gorria, P., Calderon, F. L., Faye, V., Deminiere, B., et Bibette, J. (2010). Rheological and shearing conditions for the preparation of monodisperse emulsions. *Langmuir*, **16**, 422–429.
- Mallock, A. (1888). Determination of the viscosity of water. *Proc. R. Soc. London A*, **45**, 126–132.
- Manneville, S. (2008). Recent experimental probes of shear banding. *Rheol. Acta*, **47**, 301–318.
- Manneville, S., Bécu, L., et Colin, A. (2004). High-frequency ultrasonic speckle velocimetry in sheared complex fluids. *Eur. Phys. J. AP*, **28**, 361–373.
- Marze, S., Langevin, D., et Saint-Jalmes, A. (2008). Aqueous foam slip and shear regimes determined by rheometry and multiple light scattering. *J. Rheol.*, **52**, 1091–1111.

- McKinley, G., Pakdel, P., et Oztekin, A. (1996). Rheological and geometric scaling of purely elastic flow instabilities. *J. Non Newtonian Fluid Mech.*, **67**, 19.
- Medalia, A. et Heckman, F. (1969). Morphology of aggregates–II. Size and shape factors of carbon black aggregates from electron microscopy. *Carbon*, **7**, 567 – 582.
- MEEKER, S. P., BONNECAZE, R. T., et CLOITRE, M. (2004). Slip and flow in soft particle pastes. *Physical review letters*, **92**, 198302–1.
- Mewis, J. et Wagner, N. (2009). Thixotropy. *Adv. Colloid Interface Sci.*, **147–148**, 214–227.
- Mezzenga, R., Schurtenberger, P., Burbidge, A., et Michel, M. (2005). Understanding foods as soft materials. *Nature Mater.*, **4**, 729–740.
- Miguel, M.-C., Vespignani, A., Zaiser, M., et Zapperi, S. (2002). Dislocation jamming and andrade creep. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 165501.
- Møller, P. C. F., Rodts, S., Michels, M. A. J., et Bonn, D. (2008). Shear banding and yield stress in soft glassy materials. *Phys. Rev. E*, **77**, 041507.
- Monkman, F. C. et Grant, N. J. (1956). low carbon, low nitrogen improve strainless properties. *Proc. ASTM*, **56**, 593–620.
- Montaldo, G., Tanter, M., Bercoff, J., Benech, N., et Fink, M. (2009). Coherent plane-wave compounding for very high frame rate ultrasonography and transient elastography. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelec. Freq. Contr.*, **56**, 489–506.
- Morozov, A. et van Saarloos, W. (2007). An introductory essay on subcritical instabilities and the transition to turbulence in visco-elastic parallel shear flows. *Physics Reports*, **447**, 112 – 143.
- Moschakis, T., Murray, B. S., et Dickinson, E. (2010). On the kinetics of acid sodium caseinate gelation using particle tracking to probe the microrheology. *Journal of Colloid and Interface Science*, **345**, 278 – 285.
- Muller, S. J. (2008). Elastically-influenced instabilities in taylor-couette and other flows with curved streamlines : a review. *Korea-Australia Rheology Journal*, **20**, 117–125.
- Mullin, T. (2011). Experimental studies of transition to turbulence in a pipe. *Annual Review of Fluid Mechanics*, **43**, 1–24.
- Nechad, H., Helmstetter, A., El Guerjouma, R., et Sornette, D. (2005). Creep ruptures in heterogeneous materials. *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 045501.
- Oppong, F. K., Rubatat, L., Bailey, A. E., Frisken, B. J., et de Bruyn, J. R. (2006). Microrheology and structure of a polymer gel. *Phys. Rev. E*, **73**, 041405.
- Osuji, C. O., Kim, C., et Weitz, D. A. (2008). Shear thickening and scaling of the elastic modulus in a fractal colloidal system with attractive interactions. *Phys. Rev. E*, **77**, 060402.

- Ovarlez, G., Cohen-Addad, S., Krishan, K., Goyon, J., et Coussot, P. (2013a). On the existence of a simple yield stress fluid behavior. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **193**, 68 – 79. *Viscoplastic Fluids : From Theory to Application*.
- Ovarlez, G., Krishan, K., et Cohen-Addad, S. (2010). Investigation of shear banding in three-dimensional foams. *Europhys. Lett.*, page 68005.
- Ovarlez, G., Tocquer, L., Bertrand, F., et Coussot, P. (2013b). Rheopexy and tunable yield stress of carbon black suspensions. *Soft Matter*, **9**, 5540–5549.
- Page, J. H., Cowan, M. L., et Weitz, D. A. (2000). Diffusing acoustic wave spectroscopy of fluidized suspensions. *Physica B*, **279**, 130–133.
- Pakdel, P. et McKinley, G. H. (1996). Elastic instability and curved streamlines. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 2459–2462.
- Pantea, D., Darmstadt, H., Kaliaguine, S., et Roy, C. (2003). Electrical conductivity of conductive carbon blacks : influence of surface chemistry and topology. *Applied Surface Science*, **217**, 181 – 193.
- Perge, C., Fardin, M.-A., Divoux, T., Taberlet, N., et Manneville, S. (2013). Fluides complexes sous cisaillement : quelques instabilités à nombre de reynolds nul. *21ème Congrès Français de Mécanique, 26 au 30 août 2013, Bordeaux, France (FR)*.
- Perge, C., Fardin, M.-A., et Manneville, S. (2014a). Inertio-elastic instability of non shear-banding wormlike micelles. *Soft Matter*, **10**, 1450–1454.
- Perge, C., Fardin, M.-A., et Manneville, S. (2014b). Surfactant micelles : Model systems for flow instabilities of complex fluids. *The European Physical Journal E*, **37**.
- Perge, C., Taberlet, N., Gibaud, T., et Manneville, S. (2014). Time dependence in large amplitude oscillatory shear : a rheo-ultrasonic study of fatigue dynamics in a colloidal gel. *ArXiv e-prints*.
- Pham, K. N., Petekidis, G., Vlassopoulos, D., Egelhaaf, S. U., Pusey, P. N., et Poon, W. C. K. (2006). Yielding of colloidal glasses. *Europhys. Lett.*, **66**, 624–630.
- Piau, J. (2007). Carbopol gels : Elastoviscoplastic and slippery glasses made of individual swollen sponges : Meso- and macroscopic properties, constitutive equations and scaling laws. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **144**, 1 – 29.
- Pierce, A. D. (1994). *Acoustics. An Introduction to Its Physical Principles and Applications*. American Institute of Physics.
- Pouzot, M., Nicolai, T., Benyahia, L., et Durand, D. (2006). Strain hardening and fracture of heat-set fractal globular protein gels. *Journal of Colloid and Interface Science*, **293**, 376 – 383.
- Qian, M., Niu, L., Wang, Y., et Jiang, B. (2010). Measurement of flow velocity fields in small vessel-mimic phantoms and vessels of small animals using micro ultrasonic particle image velocimetry (micro-epiv). *Phys. Med. Biol.*, **55**, 6069–6088.

- Ragouilliaux, A., Ovarlez, G., Shahidzadeh-Bonn, N., Herzhaft, B., Palermo, T., et Coussot, P. (2007). Transition from a simple yield-stress fluid to a thixotropic material. *Phys. Rev. E*, **76**, 051408.
- Rehage, H. et Hoffmann, H. (1982a). Shear induced phase transitions in highly dilute aqueous detergent solutions. *Rheol. Acta*, **21**, 561–563.
- Rehage, H. et Hoffmann, H. (1982b). Shear induced phase transitions in highly dilute aqueous detergent solutions. *Rheol. Acta*, **21**, 561–563.
- Rehage, H. et Hoffmann, H. (1991). Viscoelastic surfactant solutions : model systems for rheological research. *Molecular Physics*, **74**, 933–973.
- Reiner, M. (1964). The Deborah number. *Print edition*, **17**.
- Riecke, H. et Paap, H.-G. (1987). Perfect wave-number selection and drifting patterns in ramped Taylor vortex flow. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 2570–2573.
- Roberts, G. P. et Barnes, H. A. (2001). New measurements of the flow-curves for carbopol dispersions without slip artefacts. *Rheol. Acta*, **40**, 499–503.
- Roefs, S., Groot-Mostert, A. D., et Vliet, T. V. (1990). Structure of acid casein gels 1. formation and model of gel network. *Colloids and Surfaces*, **50**, 141 – 159.
- Rogers, S. A., Erwin, B. M., Vlassopoulos, D., et Cloitre, M. (2011). Oscillatory yielding of a colloidal star glass. *J. Rheol.*, **55**, 733–752.
- Rosti, J., Koivisto, J., Laurson, L., et Alava, M. J. (2010). Fluctuations and scaling in creep deformation. *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 100601.
- Salmon, J.-B., Bécu, L., Manneville, S., et Colin, A. (2003a). Towards local rheology of emulsions under Couette flow using dynamic light scattering. *Eur. Phys. J. E*, **10**, 209–221.
- Salmon, J. B., Colin, A., Manneville, S., et Molino, F. (2003b). Velocity profiles in shear-banding wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 228303.
- Salmon, J.-B., Manneville, S., Colin, A., et Pouligny, B. (2003c). An optical fiber based interferometer to measure velocity profiles in sheared complex fluids. *Eur. Phys. J. AP*, **22**, 143–154.
- Samanta, D., Dubief, Y., Holzner, M., Schäfer, C., Morozov, A. N., Wagner, C., et Hof, B. (2013). Elasto-inertial turbulence. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **110**, 10557–10562.
- Samson, R., Mulholland, G. W., et Gentry, J. W. (1987). Structural analysis of soot agglomerates. *Langmuir*, **3**, 272–281.
- Sandrin, L., Catheline, S., Tanter, M., Hennequin, X., et Fink, M. (1999). Time-resolved pulsed elastography with ultrafast ultrasonic imaging. *Ultrason. Imaging*, **21**, 259–272.

- Sandrin, L., Manneville, S., et Fink, M. (2001). Ultrafast two-dimensional ultrasonic speckle velocimetry : A tool in flow imaging. *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 1155–1157.
- Schmid, P. J. et Henningson, D. S. (2001). *Stability and transition in shear flows*, volume 142 of *Applied Mathematical Sciences*. Springer.
- Seth, J. R., Locatelli-Champagne, C., Monti, F., Bonnecaze, R. T., et Cloitre, M. (2012). How do soft particle glasses yield and flow near solid surfaces? *Soft Matter*, **8**, 140–148.
- Siebenbürger, M., Ballauff, M., et Voigtmann, T. (2012). Creep in colloidal glasses. *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 255701.
- Spenley, A., Cates, M. E., et McLeish, T. C. B. (1993). Nonlinear rheology of wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 939–942.
- Sprakel, J., Lindström, S. B., Kodger, T. E., et Weitz, D. A. (2011). Stress enhancement in the delayed yielding of colloidal gels. *Phys. Rev. Lett.*, **106**, 248303.
- Storm, C., Pastore, J. J., MacKintosh, F. C., Lubensky, T. C., et Janmey, P. A. (2005). Nonlinear elasticity in biological gels. *Nature*, **435**, 191–194.
- Stricker, J., Falzone, T., et Gardel, M. L. (2010). Mechanics of the f-actin cytoskeleton. *Journal of Biomechanics*, **43**, 9 – 14. Special Issue on Cell Mechanobiology.
- Sundararajan, G. (1989). The monkman–grant relationship. *Mater Sci Eng A*, **112**, 205–214.
- Tagg, R. (1994). The couette-taylor problem. *Nonlinear Sci. Today*, **4**, 1–25.
- Tanner, R. I. (1970). A theory of die-swell. *J. Polym. Sci. A-2 Polym. Phys.*, **8**, 2067–2078.
- Taylor, G. (1923a). Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character*, **223**, 289–343.
- Taylor, G. (1923b). Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, **223**, 289–343.
- Taylor, G. (1936). Fluid friction between rotating cylinders. i. torque measurements. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **157**, 546–564.
- Trappe, V., Pitard, E., Ramos, L., Robert, A., Bissig, H., et Cipelletti, L. (2007). Investigation of  $q$ -dependent dynamical heterogeneity in a colloidal gel by x-ray photon correlation spectroscopy. *Phys. Rev. E*, **76**, 051404.
- Trappe, V. et Weitz, D. A. (2000). Scaling of the viscoelasticity of weakly attractive particles. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 449–452.
- Truong, M. et Walker, L. (2000). Controlling the shear-induced structural transition of rodlike micelles using nonionic polymer. *Langmuir*, **16**, 7991 – 7998.

- Tschoegl, N. (1989). *The phenomenological theory of linear viscoelastic behavior : an introduction*. Springer-Verlag.
- van der Waarden, M. (1950). Stabilization of carbon black dispersion in hydrocarbons. *J. Colloid Sci.*, **5**, 317–325.
- van Vliet, T. et Walstra, P. (1995). Large deformation and fracture behaviour of gels. *Faraday Discuss.*, **101**, 359–370.
- Vanel, L., Ciliberto, S., Cortet, P.-P., et Santucci, S. (2009). Time-dependent rupture and slow crack growth : elastic and viscoplastic dynamics. *Journal of Physics D : Applied Physics*, **42**, 214007.
- Viovy, J.-L. (2000). Electrophoresis of dna and other polyelectrolytes : Physical mechanisms. *Rev. Mod. Phys.*, **72**, 813–872.
- Weissenberg, K. (1947). A continuum theory of rheological phenomena. *Nature*, **159**, 310–311.
- Welch, S. E., Stetzer, M. R., Hu, G., Sirota, E. B., et Idziak, S. H. J. (2002). Inter-membrane spacing and velocity profiling of a lamellar lyotropic complex fluid under flow using x-ray diffraction. *Phys. Rev. E*, **65**, 061511.
- Wereley, S. et Lueptow, R. (1998). Spatio-temporal character of non-wavy and wavy taylor-couette flow. *J. Fluid Mech.*, **364**, 59–80.
- Wever, D., Picchioni, F., et Broekhuis, A. (2011). Polymers for enhanced oil recovery : A paradigm for structure-property relationship in aqueous solution. *Progress in Polymer Science*, **36**, 1558 – 1628. Special Topic : Energy Related Materials.
- Wilhelm, M. (2002). Fourier-transform rheology. *Macromol. Mater. Eng.*, **287**, 83–105.
- Yang, J. (2002). Viscoelastic wormlike micelles and their applications. *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.*, **7**, 276–281.