

Numéro 6 - 01 Avril 2023 Pages 27 - 36



ÉTUDE DYNAMIQUE DE FLUIDES COMPLEXES : ÉCOULEMENT D'UN FLUIDE VISCO-ÉLASTIQUE

PIERRE PAJUELO

Depuis le 19^e siècle, une partie de la recherche en mécanique des fluides s'est tournée à la fois vers la description du comportement des fluides mais aussi vers l'étude de l'origine du comportement des fluides, et plus particulièrement sur la classification de ceux-ci. Les chercheurs ont alors distingué deux classes de fluides : les fluides newtoniens et les fluides complexes. Même si les fluides newtoniens restent encore bien mystérieux, certains chercheurs s'interrogent sur la nature des fluides complexes. Les fluides complexes sont omniprésents dans de nombreux domaines : alimentaire (crèmes, mousses,...), cosmétique (shampoings, gels,...), produits industriels (peintures, aérosols,...), fluides biologiques (sang, mucus,...). Au sein de la large gamme de fluides complexes, nous nous intéresserons aux fluides visco-élastiques, et plus particulièrement à l'écoulement de fluides viscoélastiques au travers d'études tirées de la littérature.

1. INTRODUCTION

Afin de mieux caractériser le comportement des fluides [1, 2] complexes, on peut distinguer, tout d'abord, les deux classes de fluides précédemment introduites :

- Les fluides newtoniens [3] visqueux, comme l'eau, l'huile, le miel, qui résistent à un écoulement en cisaillement, avec une viscosité indépendante du taux de cisaillement, et présentent une déformation qui augmente linéairement avec le temps lorsqu'une contrainte est appliquée. Leur étude peut réserver encore aujourd'hui de nombreux mystères [4, 5];
- Les fluides complexes [6, 7] qui sont généralement des mélanges binaires : solide-liquide (suspensions ou solutions contenant des macromolécules telles que des polymères ou des micelles géantes), solide-gaz (milieux granulaires), liquide-gaz (mousses) et liquideliquide (émulsions); dont la viscosité peut varier avec le taux de cisaillement ou la contrainte, varier dans le temps (thixotropie) par des mécanismes de structuration ou d'agrégation internes et peuvent également développer des contraintes élastiques (viscoélasticité).

Dans la classe des fluides complexes se trouvent donc des fluides visco-élastiques qui présentent un comportement intermédiaire entre celui d'un solide élastique idéal et celui d'un liquide visqueux newtonien, sous certains régimes et sous certaines conditions appliquées.

Dans la suite, nous allons décrire les relations fondamentales que l'on retrouve en élasticité et en viscosité (Hooke, Newton) puis nous allons nous placer dans le cas d'un régime linéaire pour décrire le module de cisaillement complexe caractéristique d'un fluide visco-élastique.

1.1. Viscosité & Élasticité

On définit la grandeur reliée aux forces appliquées au système étudié, à savoir le tenseur des contraintes $[\sigma]$ tel qu'il vérifie la relation :

$$\mathbf{d}\boldsymbol{F} = [\sigma] \cdot \mathbf{d}\boldsymbol{S},\tag{1}$$

avec $\mathbf{d} \boldsymbol{F}$ les forces appliquées sur la surface de normale $\mathbf{d} \boldsymbol{S}.$

On cherche à caractériser la déformation induite par une contrainte σ . Pour cela, on introduit le tenseur des déformations $[\gamma]$, noté aussi [e] dans la littérature, déduit à partir de la partie symétrique du gradient de déplacement [F]. Pour cela on part de :



Fig. 1 Définition du vecteur $\delta \mathbf{r}' = (AB)_{a près} = \mathbf{r}'_B - \mathbf{r}'_A$. Le solide considéré S est représenté par le contour rouge.

$$\boldsymbol{\delta r}' = \left([\mathbb{1}] + [F] \right) \boldsymbol{\delta r}, \tag{2}$$

avec

$$[F]_{i,j} = \frac{\partial u_i}{\partial x_j},\tag{3}$$

tel qu'on puisse décomposer le tenseur gradient de déplacement en sa partie symétrique $[\gamma]$ et sa partie antisymétrique $[\omega]$ (le tenseur des rotations), avec $[F] = [\gamma] + [\omega]$ où

$$[\gamma]_{i,j} = \frac{1}{2} \Big[\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \Big],\tag{4}$$

avec u le champ de déplacement.

On introduira également le gradient de vitesse $[\dot{\gamma}]$, souvent appelé dans la littérature taux de cisaillement, tel que :

$$[\dot{\gamma}]_{i,j} = \frac{1}{2} \Big[\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \Big],\tag{5}$$

avec v le champ de vitesse.

Pour un solide élastique parfait on introduira la loi de Hooke, telle que la contrainte est liée à la déformation :

$$[\sigma] = G \cdot [\gamma], \tag{6}$$

avec G le module élastique. Pour la suite on notera aussi qu'un processus de déformation d'un solide est réversible et que l'annulation de la contrainte permet au solide de reprendre sa forme initiale. Cette propriété suppose que le matériau répond instantanément.

Pour un fluide purement visqueux, on introduira la loi de Newton, telle que la contrainte est liée au taux de cisaillement :

$$[\sigma] = \eta \cdot [\dot{\gamma}],\tag{7}$$

avec η la viscosité dynamique. Pour la suite on notera aussi qu'une déformation d'un fluide simple, dit newtonien, est irréversible et permanente. Le fluide est appelé sans mémoire et la réponse est instantanée. De plus, si le fluide est isotrope, la viscosité η est constante.

1.2. Régimes linéaire & non-linéaire

Dans ce paragraphe on va dissocier la notion de régime linéaire et non-linéaire dans l'étude de la déformation de fluides et solides visco-élastiques et isotropes.

On définit d'abord le temps de relaxation visco-élastique τ qui correspond au temps typique de recouvrement de la configuration d'équilibre après arrêt de la déformation. C'est ce temps qui va permettre notamment de fixer des limites entres les différents régimes.

On distingue alors deux situations :

- Si les objets structuraux se déforment proportionnellement à la contrainte appliquée : il s'agit du régime linéaire;
- Si les objets structuraux ne se déforment plus proportionnellement à la contrainte appliquée, mais que leurs déformations saturent, traduisant l'apparition de termes non-linaires : il s'agit du régime nonlinéaire.

En rhéologie on est souvent amené à considérer deux expériences types :

— Le cisaillement permanent, permettant de sonder le régime stationnaire de la déformation induite;

 La déformation oscillante, permettant d'étudier la réponse fréquentielle du système mécanique.

Dans ces deux expériences, il est donc utile de déterminer des régimes de linéarité ou de non-linéarité :

- Dans le cas d'un mouvement oscillatoire, on sera en régime linéaire si la déformation imposée γ est inférieure à une certaine valeur limite γ_c . On notera aussi que γ_c tend à diminuer lorsque la fréquence augmente [8], puisque les constituants sont plus susceptibles de ne pas se réarranger à haute fréquence;
- Dans le cas d'un mouvement de cisaillement continu, on introduit le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ qui fixe la fréquence de collision entre les objets. Dans le cas où $\dot{\gamma} < (\gamma_c/\tau)$ avec τ le temps de relaxation, on se trouve en régime linéaire. Dans ce cas on étudiera un comportement newtonien, avec des contraintes normales modérées. D'autre part, dans le régime non-linéaire, la viscosité de cisaillement dépendra de $\dot{\gamma}$.

De manière générale, il y a une dépendance possible des coefficients $G(\gamma)$, $\eta(\gamma)$, qui disparaît en régime linéaire, de manière à rendre ces coefficients constants. De plus, en régime linéaire, les relations entre σ et $\dot{\gamma}$ ou γ sont linéaires.

Dans la suite on supposera que l'on se place en régime linéaire, tel que la déformation respecte $\gamma \ll 1$, et que la contrainte reste proportionnelle à γ ou $\dot{\gamma}$.

On ne s'intéresse qu'à ce régime, puisqu'il faut comprendre ses spécificités avant d'étudier le régime non-linéaire.

1.3. Module de cisaillement complexe

Un échantillon est soumis à une déformation sinusoïdale d'amplitude γ_0 et de pulsation ω :

$$\gamma(t) = \gamma_0 \exp(i\,\omega t). \tag{8}$$

Si γ_0 reste suffisamment petit ($\gamma_0 \ll 1$), les contraintes restent proportionnelles à γ_0 (régime de viscoélasticité linéaire).

Pour résoudre analytiquement l'expression de différentes grandeurs (σ , $\dot{\gamma}$, ...), on peut utiliser des modèles microscopiques simples, permettant de décrire à l'échelle macroscopique le comportement mécanique des fluides complexes, comme celui de Maxwell [9] ou Jeffrey [10]. Dans le cas d'un modèle de Maxwell, on peut relier la contrainte au taux de cisaillement par une relation du type :

$$\dot{\sigma} + \frac{G}{\eta} \,\sigma = G \,\dot{\gamma}.\tag{9}$$

En utilisant la solution de l'équation 9 lorsque $\dot{\gamma}$ n'est pas constant, on obtient :

$$\sigma(t) = i\,\omega\gamma_0 \int_{-\infty}^t G(t - t')\,\exp(i\omega\,t')\,\mathrm{d}t' \quad (10)$$

$$\stackrel{u=t-t'}{=} \gamma_0 \, \exp(i\omega \, t) \, i \, \omega \int_0^{+\infty} G(u) \, \exp(-i\omega \, u) \, \mathrm{d}u, \quad (11)$$

avec G(t) le module de relaxation sous cisaillement. On reconnaît alors :

$$\sigma(t) = \gamma(t)G^*(\omega), \qquad (12)$$

avec G^* le module de cisaillement complexe.

On pose habituellement :

$$G^*(\omega) = i\,\omega \int_0^{+\infty} G(u)\,\exp(-i\,\omega u)\,\mathrm{d}u. \tag{13}$$

On peut décomposer G^* de l'équation 13 en sa partie réelle :

$$G' = \omega \int_0^{+\infty} G(u) \sin(\omega u) \,\mathrm{d}u, \qquad (14)$$

et sa partie imaginaire :

$$G'' = \omega \int_0^{+\infty} G(u) \, \cos(\omega u) \, \mathrm{d}u, \qquad (15)$$

tel que $G^* = G' + i G''$. Avec G' le module élastique (ou module de conservation) et G'' le module de perte.



Fig. 2 (a) Valeur de la viscosité dynamique η en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ pour un rapport de concentration $C_b = \frac{C(\text{NaSal})}{C(\text{CTAB})} = 2$, la courbe tracée en pointillées correspond au modèle de Cross [11], les points correspondent aux valeurs expérimentales; (b) Valeurs de G' (\blacksquare) et G'' (\bullet) en fonction de la fréquence f pour un mélange associé à $C_b = 2$, la courbe tracée en pointillées correspond au modèle de Maxwell pour chacun des modules. Les données sont obtenues [12] pour un mélange CTAB/NaSal.

L'un des intérêts de l'introduction du modèle de Jeffrey est qu'il permet de prédire de manière analytique le comportement du module élastique (14) et du module de perte (15) à haute fréquence (Figure 2 (b)) en faisant apparaître la viscosité liée aux particules en suspension dans le solvant, tandis que le modèle de Maxwell ajuste le mieux les données expérimentales aux fréquences basses et intermédiaires (Figure 2 (b)) étant donné que le module G^* est dominé par le terme lié à la viscosité du solvant aux basses fréquences. Une autre observation expérimentale consiste à tracer l'évolution de la viscosité dynamique η en fonction de $\dot{\gamma}$ (Figure 2 (a)) pour visualiser la fréquence caractéristique à laquelle le caractère visqueux ($\eta \approx Cte$) laisse place à un caractère élastique $(\eta = f(\dot{\gamma}))$, ce qui correspond également à un changement de prédominance dans les modules (Figure 2 (b)).

D'autre part, la mesure expérimentale de ces deux modules permet d'expliquer les comportements particuliers des fluides dans certains régimes (forte dépendance en ω) développés dans la suite [13].

Ces modèles restent cependant à affiner suivant la structure des fluides complexes [14, 15] car ils ne permettent pas, d'une part, de reproduire l'allure des modules suivant les différentes gammes de fréquences, mais aussi de modéliser correctement à l'échelle microscopique les différentes interactions (particules-solvant, particules-particules, ...). Cela peut être corrigé, par exemple, par une mise en parallèle d'éléments de Maxwell, menant au modèle de Maxwell généralisé [16].

1.4. Définitions

Pour mieux comprendre certaines notions évoquées par la suite, on donne aussi quelques définitions utiles.

Solution semi-diluée de polymères ou de micelles géantes : Solutions constituées d'un additif dispersé dans un solvant de concentration en polymères ou en micelles telle que la distance entre le centre de masse de 2 polymères/micelles est inférieure à leur rayon de giration, *i.e.* les polymères/micelles sont enchevêtrés [17].

Micelle géante : Aggrégation de tensionactif (sous forme de cylindre pour assurer la viscoélasticité), *i.e.* une molécule amphiphile, dans une phase aqueuse, telle que sa concentration soit supérieure à une concentration micellaire critique (**CMC**) [18] (Figure 3).



Fig. 3 Apparition d'aggrégats de tensioactifs suivant leurs concentrations [19].

Dans la suite de cet article, nous discuterons de plusieurs types d'écoulement suivant des modèles simples, permettant une première approche, avant de considérer des écoulements plus complexes, à savoir :

- Ecoulements autour d'un obstacle (sphère, cylindre);
- Ecoulements à travers un orifice.

2. ECOULEMENTS AUTOUR D'UN OBSTACLE

2.1. Ecoulement autour d'une sphère

Avant d'étudier un exemple d'écoulement complexe autour d'une sphère, nous allons rappeler les principaux résultats obtenus avec un fluide newtonien.

On considère donc le mouvement d'une particule à travers un liquide macroscopiquement au repos comme présenté dans la Figure 4. Même si le liquide reste globalement au repos dans le récipient, le déplacement de la particule induit des déformations du liquide autour de cet objet : le liquide exerce une résistance visqueuse qui tend à ralentir le mouvement de l'objet. Cette force est fonction de la viscosité du liquide, de la forme et de la taille de la particule, et de la vitesse du mouvement relatif.

On suppose que la particule reste très loin des parois du récipient, si bien que la présence de ces parois ne joue aucun rôle sur l'écoulement autour de la particule. Les mouvements induits au sein du liquide par ce mouvement sont plus complexes que ceux résultant d'un cisaillement simple. Considérons une particule se déplaçant à travers le liquide sous l'action d'une force F constante. Le mouvement résultant du liquide peut être décrit par sa distribution (ou champ) des vitesses, c'est-à-dire la valeur de la vitesse en tout point de l'espace.



Fig. 4 Déplacement d'une sphère à la vitesse \boldsymbol{V} à travers un liquide macroscopiquement au repos.

Après un développement mathématique [20] on peut montrer que la force résistant au mouvement de la particule s'écrit :

$$F_{\rm D} = k\,\mu V d,\tag{16}$$

où $k = 6\pi$ et d = R pour une sphère de rayon R dans un fluide newtonien, V la vitesse du fluide et μ la viscosité du fluide newtonien. Dans la suite on s'intéressera au cas d'une sphère en écoulement dans un fluide non-newtonien.

Le groupe de recherche dirigé par Rothstein, J.P. a publié une revue dans Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics sur des études du comportement, durant l'écoulement, d'un fluide complexe contenant des micelles géantes, notamment autour d'obstacles [13]. Ce groupe de recherche s'est aussi intéressé aux interactions entre des fluides (du même type) et des obstacles [21-24].

Il sera développé dans la suite l'écoulement de fluide complexe autour d'une sphère. Historiquement, Jayaraman et Belmonte [25] ont utilisé une solution de CTAB/-NaSal (9 mM/9 mM)^{*a*} possédant les propriétés désirées [26]. On introduit le nombre sans dimension de Weissenberg Wi, qui évalue le rapport entre les forces élastiques et visqueuses [27] (souvent associé au nombre de Deborah De, qui compare le temps de relaxation caractérisant la fluidité intrinsèque d'un matériau, comme définit auparavant, et l'échelle de temps caractéristique d'une expérience testant la réponse du matériau), tel que :

$$Wi = \lambda \dot{\gamma} \approx \lambda \frac{U}{d}, \qquad (17)$$

avec U la vitesse de sédimentation moyenne de la sphère ; d le diamètre de la sphère ; λ un temps caractéristique du phénomène physique.

Sous un cisaillement critique tel que Wi > 45, les auteurs observent l'instabilité décrite dans la Figure 5, pour une sphère de rayon R avec une longueur caractéristique de l'écoulement d.

Les auteurs constatent des fluctuations soudaines de la vitesse de sédimentation de la sphère, caractéristiques d'un régime intermittent (oscillations entre un module élastique prépondérant et un module de perte prépondérant).

L'hypothèse alors soulevée est celle d'un cisaillement par bande, c'est à dire un cisaillement qui s'effectuerait sous certaines conditions de vitesse de la sphère, sur une partie de l'écoulement.



Fig. 5 (a) Évolution temporelle de la vitesse de la sphère obtenue par acquisition temporelle du mouvement de la sphère dans le fluide. On dénote plusieurs régions intéressantes dont l'écoulement sera étudié en particulier ; (b) Champs de vitesse autour de la sphère suivant la région temporelle de l'écoulement (accélération ou décélération de la sphère). [28, 29]

L'interprétation des figures 5 réside dans le fait que la sphère (représentée en noir au centre de la photo) atteint une vitesse telle que le fluide environnant a désormais un comportement élastique prédominant au regard de celle-ci, ce qui ralentit brutalement le mouvement de la sphère comme observé dans la région III (Figure 5 (a)). De même, une fois que le ralentissement est important, le fluide perd son comportement élastique pour retrouver un comportement visqueux comme illustré dans la région IV (Figure 5 (a)). C'est cette alternance rapide entre accélération et décélération de la sphère qui fait apparaître des pics d'intensité dans le relevé de la vitesse au cours du temps (Figure 5 (a)).

Dans le même temps, Chen et Rothstein [30] ont rapporté l'existence d'une instabilité semblable pour Wi ≥ 4 dans une solution semi-diluée de micelles géantes

a. mM = mmol $\cdot L^{-1}$

CTAB/NaSal de concentration (50 mM/50 mM), différente de celle précédemment introduite. Ils en ont conclu que l'instabilité du sillage est directement liée à la scission de la chaîne micellaire induite par l'écoulement, puisque sous certaines conditions d'écoulement, les filaments micellaires se sont cassés.

Il sera développé dans la suite l'écoulement de fluide complexe contenant des micelles géantes autour d'un cylindre circulaire.

2.2. Ecoulement autour d'un cylindre

Le groupe de recherche dirigé par Haward, S.J. a publié un article dans la revue Royal Society of Chemistry sur des études du comportement, durant l'écoulement, d'un fluide complexe contenant des micelles géantes autour d'un cylindrique microfluidique [31].

Avant d'étudier le cas du fluide viscoélastique, les auteurs s'intéressent aux résultats obtenus avec un fluide newtonien en écoulement dans un canal microfluidique, autour d'un cylindre.

Pour un fluide newtonien, les auteurs constatent la présence d'un point de stationnarité proche du cylindre, avec une symétrie axiale de l'écoulement autour du cylindre (Figure 6).



Fig. 6 (a) Carte de vitesse de l'écoulement du fluide newtonien autour du clindre; (b) Évolution de la vitesse adimensionnée $\frac{u}{U}$ suivant l'axe x d'écoulement du fluide dans la conduite microfluidique. [31]

Par la suite, les auteurs étudient le comportement d'une solution de CPyCl/NaSal de concentration (100 mM/60 mM) dont les propriétés viscoélastiques (Figure 7) ont été démontrées par le passé [32].

En faisant s'écouler ledit fluide dans la conduite, les auteurs aperçoivent alors une nette asymétrie de l'écoulement pour Wi > 60 (Figure 8), ce qui peut être démontré par une approche de type Landau, et confère au nombre de Weissenberg l'information sur la symétrie de l'écoulement. De même, les auteurs mettent en évidence l'existence d'une dépendance temporelle de l'écoulement, pouvant être vu comme une zone de régime instable, pour Wi > 130, ce qui peut être aperçu dans la carte des retards moyens du champ de vitesse (Figure 8). Enfin, l'écoulement adopte une nouvelle symétrie pour des valeurs de Wi $> 1\,000$, ce qui est observé dans la figure 8 pour Wi = 1875.

On peut s'intéresser également au profil de vitesse suivant la direction y sur une section de la conduite (Figure 9) pour comparer les comportements d'un fluide newtonien et viscoélastique. On observe l'apparition de bandes de cisaillement apparaissent sous certaines conditions de cisaillement au niveau de la paroi de la conduite (noté $\dot{\gamma}_W$).

Le groupe de recherche de Rothstein, J.P. a de même étudié la différence avec un cylindre flexible [23]. Ils observent un résultat similaire avec une instabilité pour Wi = 390 (Figure 10).

Ainsi on a pu voir que les écoulements de fluide viscoélastique autour d'un obstacle dépendent essentiellement du régime d'écoulement dans lequel on se place. Ce type d'étude est assez récurrent et peut se retrouver dans l'étude d'autres phénomènes physiques [33].

3. ECOULEMENT AU TRAVERS D'UN ORIFICE

Afin de comprendre aussi les enjeux de la modélisation dans l'étude de phénomène physique, nous allons commencer par l'étude de la diffusion de micelles au travers d'un pore.

Le groupe de recherche dirigé par Stukan, M.R. a publié un article dans Soft Matter à propos d'une étude basée sur une simulation de l'écoulement d'un fluide de type VES (ViscoElastic Surfactants) au travers d'un milieu poreux [37]. Cette étude est souvent réalisée dans le but d'optimiser, par exemple, l'extraction d'hydrocarbures au travers de roches poreuses [38]. Ici on ne considérera qu'un seul pore dans une géométrie spatiale contenant deux canaux de largeur caractéristique Δy (Figure 11).

On considère dans cette simulation des polymères décrits de manière microscopique, modélisés sous forme de chaînes de monomères, avec des interactions entre les micelles.

Cette modélisation met en exergue des propriétés macroscopiques (élasticité, ...) qui dépendront directement des paramètres de la modélisation microscopique.

Dans la suite on présente les différentes caractéristiques microscopiques des micelles choisies.

On choisira un potentiel d'interaction entre les micelles de la forme :

$$U_{\text{bond}}(r_{\text{mm}}) = -E_{\text{sc}} + \frac{1}{2}(E_{\text{sc}} + E_a) \times \left(1 - \cos\left[\sqrt{\frac{2K}{(E_{\text{sc}} + E_a) l_p}} (r_{\text{mm}} - l_p)\right]\right),$$
(18)

avec $E_{\rm sc}$ la profondeur ajustable du potentiel attractif en joules (J); $r_{\rm mm}$ la distance séparant deux points médians dans chaque micelle en mètres (m); l_p la longueur de persistance en mètres (m) ou longueur des cylindres dans une approche grossière en mètres (m); E_a l'énergie d'activation d'interaction répulsive en joules (J); K le module élastique en pascals (Pa).

Dans cette simulation, les interactions électrostatiques



Fig. 8 (Côté gauche) Carte de vitesse moyenne le long de l'écoulement pour différents nombres de Weissenberg; (Côté droit) Carte des retards moyens du champ de vitesse sur le plan x - y pour la solution s'écoulant autour du cylindre (FIB Imaging), avec R relié à la différence d'indice optique du milieux par $R = \Delta n \cdot l$ où l est le chemin optique au travers du matériau biréfringent) [35].



Fig. 9 Profils de vitesse obtenus sur une section de conduite. Les données expérimentales sont obtenues pour la solution précédemment décrite (souvent noté WLM pour WormLike Micelle) à différentes valeurs du taux de cisaillement nominal $\dot{\gamma}_{\rm W}$. Le taux de cisaillement nominal de la paroi $\dot{\gamma}_{\rm W}$ est moyenné sur une section de 1 mm du canal (-5 < x < -4 mm). Les lignes pleines sont des prédictions numériques calculées en supposant une condition limite sans glissement et une rhéologie décrite par le modèle GNF de Carreau-Yasuda. Les lignes pointillées indiquent la solution analytique pour un écoulement newtonien entièrement développé. [35]



Fig. 10 Champ de vitesse (PIV [36]) pour une solution micellaire à Wi = 280. [23]



Fig. 11 Configuration spatiale de la simulation. Le fluide viscoélastique est introduit au travers d'une section d'entrée ("inflow") puis on analyse l'écoulement au travers de la section de sortie ("outflow").[37]



Fig. 7 Courbes rhéologiques associées à la solution de CPy-Cl/NaSal (100 mM/60 mM). Les auteurs incluent un modèle de Carreau-Yasuda [34] pour l'étude de la contrainte σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$. Les auteurs étudient également la réponse du fluide pour différentes géométries du rhéomètre [31]. On remarque que le modèle de Maxwell, dans ce cas, ne permet pas non plus de reproduire le comportement aux hautes fréquences.

sont ignorées et on fonde la dynamique sur celle du **mou**vement Brownien. On assimilera les objets à des barres rigides, de dimensions $l_p \times d$, plongées dans un solvant, considéré newtonien, de viscosité μ (Figure 12).



Fig. 12 Procédure de granulométrie grossière. On assimile les micelles à des barres rigides reliées les unes aux autres, orientées avec des angles différents pour reproduire la courbure. [37]

On considérera aussi que les micelles n'ont aucune influence sur la vitesse de l'écoulement, de sorte que le profil de celui-ci reste constant.

Dans la simulation réalisée, on discrétise la vitesse telle que :

$$\boldsymbol{r}_{i}(t + \Delta t) = \boldsymbol{r}_{i}(t) + \boldsymbol{\Theta}_{i}^{-1} \cdot \boldsymbol{F}_{i} \Delta t + \boldsymbol{v}_{\text{flow}}(\boldsymbol{r}_{i}(t)) \Delta t + \Delta \boldsymbol{r}_{i}^{\text{R}},$$
(19)

$$\langle \Delta \boldsymbol{r}_i^{\mathrm{R}} \Delta \boldsymbol{r}_i^{\mathrm{R}} \rangle = 2k_{\mathrm{B}}T\Theta_i^{-1}\Delta t,$$
 (20)

avec Δt le pas de temps d'intégration; F_i la force conservative totale; v_{flow} la vitesse de l'écoulement imposée, évaluée au point r_i ; Δr_i^{R} le déplacement aléatoire - d'où le R en exposant pour "random" (assimilé à la force aléatoire F_{ξ}); Θ_i^{-1} le tenseur inverse des frottements, lié à la viscosité du fluide.

Ces équations sont obtenues dans le cadre de la simulation et représente une généralisation des équations de Langevin pour une sphère [39].

En effet, en se plaçant dans un régime visqueux et en négligeant le terme inertiel (régime sur-amorti), les équations décrivant la dynamique sont :

$$m \frac{\mathrm{d} \boldsymbol{v}}{\mathrm{d} \boldsymbol{k}} = \boldsymbol{F}_i - 6\pi \mu R \, \boldsymbol{v} + \boldsymbol{F}_{\boldsymbol{\xi}}, \qquad (21)$$

où F_{ξ} est une force aléatoire modéliqée par un bruit blanc tel que la moyenne et l'autocorrélation sont donnés par :

$$\langle \boldsymbol{F}_{\boldsymbol{\xi}} \rangle = 0, \tag{22}$$

$$\langle \boldsymbol{F}_{\boldsymbol{\xi}}(t) \, \boldsymbol{F}_{\boldsymbol{\xi}}(t+\tau) \rangle = \delta(\tau) \, (2k_B T \gamma).$$
 (23)

L'équation (21) est appelée équation de Langevin et décrit le mouvement d'une particule brownienne dans un fluide de viscosité μ , à la vitesse \boldsymbol{v} sous l'effet d'une force aléatoire \boldsymbol{F}_{ξ} et de coefficient de friction phénoménologique γ .

L'équation (23) résulte du théorème de fluctuationdissipation à l'équilibre, donnant la fonction de corrélation de la force F_{ξ} [40].

Dans un premier temps, les auteurs étudient le phénomène de diffusion pure au travers de l'orifice, *i.e.* en imposant $v_{\text{flow}} = 0$.

Pour cela on réalise un mélange de micelles que l'on porte à l'équilibre et que l'on autorise à s'écouler dans les pores (Figure 13).

Les auteurs s'intéressent ici à l'influence de la taille du pore et de la longueur des polymères sur le nombre d'objets traversant le pore. Pour ce faire, ils font varier la taille du pore $\Delta y \in \{30, 50, 100, 150\}$ nm et ils distinguent deux types de micelles : celles consistuées de monomères individuels ($E_{\rm sc} = 0 \, {\rm attoJ}$) et celles sous forme de polymères ($E_{\rm sc} = 0.050 \, {\rm attoJ}$). On s'intéresse donc ici aux propriétés visco-élastiques de chaque type de polymères suivant leurs structures microscopiques.

La figure 14 présente le nombre de polymères ayant traversé la section interne du pore en fonction du temps.

Les auteurs constatent ainsi que plus le pore est grand, plus le nombre de micelles s'écoulant à l'intérieur est



Fig. 13 Configuration du système avant et après diffusion. Les noeuds des chaînes sont représentés en rouge et les monomères en bleu. On observe que les monomères se mettent globalement à travers la paroi de sortie avec un certain flux qui sera étudié par la suite.[37]



Fig. 14 Nombre de méso-particules diffusant dans les canaux en fonction du temps. Les auteurs font varier à la fois la structure des micelles (un seul monomère "Mono" ou plusieurs associés "Worm"). Ils font également varier la taille du pore de sortie Δy . [37]

grand. D'autre part, plus les micelles sont petites, plus elles rentrent facilement dans le pore $(N_{\text{Mono}} > N_{\text{Worm}})$. Il faut aussi constater que le nombre de micelles, au bout d'un temps caractéristique $\tau \approx 1 \text{ ms}$, reste constant, ce qui semble caractériser le phénomène de diffusion.

Dans une géométrie similaire, l'équipe de recherche dirigée par Ushida, A. a publié un article dans Experimental Thermal and Fluid Science [41] à propos d'une étude basée sur l'écoulement de plusieurs fluides : mélange 50/50eau-glycérol, solutions diluées de micelles sphériques formées à partir de différents tensioactifs : AE, BC, SDS, et des solutions de polymères PEG et PAA. Toutes les solutions utilisées sont des fluides newtoniens sauf la solution de PAA qui est rhéofluidifiante (sa viscosité varie en loi de puissance avec le cisaillement). Les solutions de tensioactifs et de PEG ont des viscosités proches de celles de l'eau. L'écoulement s'effectue au travers d'un orifice de taille réglable, sous certaines conditions de pression assurant un régime à faible nombre de Reynolds Re. Cette même équipe s'est aussi intéressée à l'écoulement de fluides aux propriétés visco-élastiques au travers d'une fente [42].

Pour ce la les auteurs ont réalisé un montage constitué d'un canal et d'un micro-orifice et ont mesuré la différence de pression entre la sortie et l'entrée du canal ΔP (Figure 15).



Fig. 15 Montage expérimental. [41]

Les auteurs réalisent une première expérience en fixant le diamètre de l'orifice à $D = 50 \,\mu\text{m}$ et mesurent ΔP en fonction du taux de cisaillement apparent $SR_{\text{orifice}} = (V/D)$ où V est la vitesse d'écoulement du fluide.



Fig. 16 Valeur de ΔP pour $D = 50 \,\mu\text{m}$ en fonction de SR_{orifice} . Les points correspondent aux différents fluides étudiés avec leurs températures d'étude associée. Les lignes tracées correspondent aux prédictions attendues. [41]

Dans la figure 16, les auteurs remarquent que les données expérimentales pour ΔP correspondent à celles attendues, à savoir celles calculées par les équations de Navier-Stokes dans la symétrie considérée [41].

Ils réalisent le même type d'expériences en fixant le diamètre de l'orifice à $D = 200 \,\mu\text{m}$ (Figure 17).

Dans la figure 17, les auteurs remarquent alors que pour l'eau et le glycérol, notamment, la différence de pression constatée est plus grande que celle attendue. Cette tendance s'observe (dans un sens comme dans l'autre) aussi pour les autres fluides, indépendamment de leurs viscosités. Néanmoins, sous certaines conditions d'écoulement on observe des similitudes avec le modèle prédit pour l'eau $(SR_{\rm orifice} \approx 10^2 \, {\rm s}^{-1})$.

Il s'avère que cette différence pour des tailles d'orifices "grandes" s'explique par un diamètre apparent différent de celui réellement présent (Figure 18).

Le liquide s'écoulerait comme à travers un orifice de diamètre plus petit. Par exemple, pour un orifice de diamètre $200 \,\mu$ m, on a un rapport $D_{\rm app}/D = 0.47$ pour l'eau et un rapport $D_{\rm app}/D = 0.41$ pour le glycérol. Ces anomalies sont principalement observées pour une gamme de $SR_{\rm orifice} < 10^3 \, {\rm s}^{-1}$.

En corrigeant la taille du diamètre dans les prédictions, les auteurs obtiennent les courbes de la figure 19.



Fig. 17 Valeur de ΔP pour $D = 200 \,\mu\text{m}$ en fonction de SR_{orifice} . Les points correspondent aux différents fluides étudiés avec leurs températures d'étude associée. Les lignes tracées correspondent aux prédictions attendues. [41]



Fig. 18 Diamètre apparent comparé au diamètre réel. [41]



Fig. 19 Valeur de ΔP pour $D = 200 \,\mu\text{m}$ en fonction de SR_{orifice} après correction de la courbe théorique. Les points correspondent aux différents fluides étudiés avec leur température d'étude associée. Les lignes tracées correspondent aux prédictions attendues puis corrigées. [41]

Les auteurs observent alors que les données sont désormais prédites par le nouveau modèle. Ainsi dans une certaine gamme de taille d'orifice, le comportement des fluides, sous certaines conditions expérimentales, change de manière considérable à cause de l'interface entre la surface solide et le liquide.

En général, la formation d'une double couche électrique entre les surfaces solides et les liquides est bien connue [43]. Dans notre cas, la différence de pression a été causée par un effet de micro-ouverture, effet observé à l'intérieur de l'orifice.

Les phénomènes observés se produisent à différentes gammes d'échelle : pour le diamètre apparent $D_{\rm app} \sim 100 \,\mu{\rm m}$, l'épaisseur de la couche électrique est de l'ordre de $10^{-1} - 10^0 \,\mu{\rm m}$ [44-46], pour une géométrie de conduite comportant un diamètre de l'ordre de 25.0 mm.

4. CONCLUSION

Au travers de l'étude de ces articles, on perçoit plusieurs aspects de la rhéologie :

- Le développement de simulations numériques est un art délicat car il s'agit de choisir correctement les paramètres de numérisation (échantillon, durée de la simulation,...), le modèle choisi ou encore les paramètres associés (Vasquez-Cook-McKinley [VCM]
 [47] (Non traité ici); VES [37]);
- La description des écoulements peut s'avérer difficile lorsque les propriétés viscoélastiques du fluide modifient son comportement suivant les conditions d'écoulement appliquées (dépendance en Wi, Re,...).

Ce rapport a ainsi permis, entre autre, de mettre en avant je l'espère, ces difficultés afin de montrer l'importance et la complexité des études actuelles en rhéologie.

Remerciements

Je souhaite avant tout remercier Éric FREYSSINGEAS et Sylvain JOUBAUD pour leur soutien et leur accompagnement tout au long de ce projet, pour toutes les heures de travail qu'ils m'ont consacré durant des mercredis aprèsmidi bien chargés. Je souhaite également remercier Stéphane SANTUCCI et Catherine BARENTIN pour leurs retours respectifs sur le rapport bibliographique initial, qui m'ont permis de faire de nombreux progrès en terme de clarté mais aussi sur l'apport de contenu scientifique. Je souhaite aussi et surtout remercier l'équipe du JPCE pour avoir accepté de participer à la finalisation de ce projet par cet article.

Références

- (1) EULER, L. *Mémoires* **1757**, *11*.
- (2) STOKES, G. G. Cambr. Philo. Soc. **1845**, *8*, 287-305.
- (3) NEWTON, I. CUP 1687.
- (4) MANNEVILLE, S., thèse de doct., 2000, http:// (www.theses.fr/2000PA077147.
- (5) ALTAZIN, T., Theses, 2017, https://tel. archives-ouvertes.fr/tel-02025511.
- (6) YOON, K.; JUNG, H. W.; CHUN, M.-S. *Rheol Acta* 2017, 56 (11), 915-926.
- (7) DIVOUX, T.; BARENTIN, C.; MANNEVILLE, S. Soft Matter 2011, 7 (19), 9335-9349.
- (8) OSWALD, P.; Échelles; Belin : Paris, 2005.
- (9) RENAUD, F.; DION, J.-L.; CHEVALLIER, G.; TAWFIQ, I.; LEMAIRE, R. Mechanical Systems and Signal Processing 2011, 25, 991-1010.
- (10) RUDERMAN, M., 2020, https://arxiv.org/abs/ 2004.12370.
- (11) HAUSWIRTH, S. C.; BOWERS, C. A.; FOWLER, C. P.; SCHULTZ, P. B.; HAUSWIRTH, A. D.; WEIGAND, T.; MILLER, C. T. J. of Cont. Hydro. 2020, 235, 103708.
- (12) FAVREAU, L., thèse de doct., 2020, http://www. theses.fr/2020LYSEN023/document.
- (13) ROTHSTEIN, J. P.; MOHAMMADIGOUSHKI, H. J. of Non-Newt. Fluid Mech. 2020, 285, 104382.
- (14) KAWASAKI, Y.; WATANABE, H.; UNEYAMA, T. Nihon Reoroji Gakkaishi 2011, 39 (3), 127-131.
- (15) Zhou, L.; McKinley, G. H.; Соок, L. P. *MIT* 2014 .
- (16) LIN, C.-Y. Front. in Mat. 2020, 7, 11.
- (17) NGHE, P., Theses, 2009, https://pastel. archives-ouvertes.fr/pastel-00005605.
- (18) PINAUD, L., Theses, 2019, https://tel. archives-ouvertes.fr/tel-02191430.
- (19) Surfactants & critical micelle concentration (CMC)
 DataPhysics Instruments, https://www. dataphysics - instruments . com / knowledge / understanding-interfaces/surfactants-cmc/ #! (visité le 27/11/2022).
- (20) COUSSOT, P. ; Savoirs actuels; EDP Sciences : 2012, 338 p.
- (21) DEY, A. A.; MODARRES-SADEGHI, Y.; ROTHSTEIN, J. P. J. of Non-Newt. Fluid Mech. 2020, 286.
- (22) DEY, A. A.; MODARRES-SADEGHI, Y.; ROTHSTEIN, J. P. J. Of Fluids and Struct. **2020**, 96.
- (23) DEY, A. A.; MODARRES-SADEGHI, Y.; ROTHSTEIN, J. P. *Phys. Rev. Flu.* **2018**, *3* (6).

- (24) DEY, A. A.; MODARRES-SADEGHI, Y.; ROTHSTEIN, J. P. J. of Fluid Mech. 2017, 813.
- (25) JAYARAMAN, A.; BELMONTE, A. *Phys. Rev. E* **2003**, *67*, 065301.
- (26) ROTHSTEIN, J. J. of Rheo. 2003, 47.
- (27) POOLE, R. The Brit. Soc. of Rheo. **2012**, 53, 32-39.
- (28) MOHAMMADIGOUSHKI, H.; MULLER, S. J. J. of *Rheo.* **2016**, *60* (4), 587-601.
- (29) ZHANG, Y.; MULLER, S. J. *Phys. Rev. Fluids* 2018, 3, 043301.
- (30) CHEN, S.; ROTHSTEIN, J. P. J. of Non-Newt. Fluid Mech. 2004, 116 (2), 205-234.
- (31) HAWARD, S. J.; KITAJIMA, N.; TODA-PETERS, K.; TAKAHASHI, T.; SHEN, A. Q. Soft Matter 2019, 15, 1927-1941.
- (32) ROTHSTEIN, J. Rheo. Rev. 2008, 1-46.
- (33) PORYLES, R.; VIDAL, V. J. of Non-Newt. Fluid Mech. 2017, 241, 26-33.
- (34) DE, S.; P.KRISHNAN; SCHAAF, J.; KUIPERS, H.; PETERS, E.; PADDING, J. J. of Coll. and Inter. Sci. 2017, 510.
- (35) PRESTON, J.; TOIVAKKA, M.; HEARD, P.; CHINGA CARRASCO, G. *PaperCon Conf.* **2009**.
- (36) BROSSARD, C.; MONNIER, J.; BARRICAU, P.; VANDERNOOT, F.; LE SANT, Y.; CHAMPAGNAT, F.; LE BESNERAIS, G. Aerospace Lab 2009, (1) , p. 1-11.
- (37) STUKAN, M. R.; BOEK, E. S.; PADDING, J. T.; BRIELS, W. J.; CRAWSHAW, J. P. Soft Matter 2008, 4, 870-879.
- (38) STUKAN, M. R.; LIGNEUL, P.; BOEK, E. S. Oil & gas sci. and tech. 2012, 67 (5), 737-742.
- (39) POMEAU, Y. Compt. Rend. Phy. 2017 .
- (40) JOUBAUD, S., thèse de doct., 2008, 1 vol. (154 p.) http://www.theses.fr/2008ENSL0463/document.
- (41) USHIDA, A.; HASEGAWA, T.; NARUMI, T. *Exp. Th.* and Fluid Sci. 2014, 52, 191-196.
- (42) USHIDA, A.; SATO, T.; NARUMI, T.; TAKAHASHI,
 T.; ONUMA, T.; ITO, M.; HASEGAWA, T. J. of Non-Newt. Fluid Mech. 2020, 280, 104296.
- (43) FRANK, H. S.; WEN, W.-Y. *Disc. Faraday Soc.* **1957**, *24*, 133-140.
- (44) MASLIYAH, J.; BHATTACHARJEE, S. , *Elec. and Coll. Transport Phen.* 2006.
- (45) HU, G.; LI, D. Chem. Eng. Sci. **2007**, 62 (13), 3443-3454.
- (46) LI, D. , *Elect. in Microfluidics*; Interface Science and Technology, t. 2; Elsevier : 2004, p. 1-643.
- (47) SASMAL, C. Phy. of Fluids **2020**, 32 (1).