



**HAL**  
open science

# Fractures et instabilités de fluides viscoélastiques en cellule de Hele-Shaw

Guillaume Foyart

► **To cite this version:**

Guillaume Foyart. Fractures et instabilités de fluides viscoélastiques en cellule de Hele-Shaw. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 2013. Français. NNT : 2013MON20104 . tel-01019314

**HAL Id: tel-01019314**

**<https://theses.hal.science/tel-01019314>**

Submitted on 7 Jul 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.

# THÈSE

Pour obtenir le grade de  
Docteur

Délivré par l'Université Montpellier II

Préparée au sein de l'école doctorale **I2S\***  
Et de l'unité de recherche **Laboratoire Charles Coulomb**

Spécialité: **Physique**

Présentée par **Guillaume Foyart**  
guillaume.foyart@univ-montp2.fr

**Fractures et instabilités de  
fluides viscoélastiques en  
cellule de Hele-Shaw.**

Soutenue le 21/11/2013 devant le jury composé de :

Mr. Christian LIGOURE	Pr. Univ. Montpellier II	Directeur de thèse
Mr. Serge MORA	Pr. Univ. Montpellier II	Co-Directeur de thèse
Mr. Matteo CICCOTTI	Pr. ESPCI	Rapporteur
Mme. Sandra LEROUGE	Pr. Univ. Paris Diderot	Rapporteur
Mme. Laurence RAMOS	Dr. CNRS	Examineur
Mme. Elisabeth BOUCHAUD	Dr. CEA-Saclay & ESPCI	Examineur

THÈSE  
présentée à  
L'UNIVERSITÉ MONTPELLIER II SCIENCES ET TECHNIQUES DU  
LANGUEDOC  
École doctorale  
INFORMATION STRUCTURES SYSTÈMES

par  
GUILLAUME FOYART  
pour obtenir le grade de docteur  
SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE

FRACTURES ET INSTABILITÉS DE FLUIDES  
VISCOÉLASTIQUES EN CELLULE DE  
HELE-SHAW.

---

Soutenue le 21 novembre 2013

**MEMBRES DU JURY :**

MR CHRISTIAN LIGOURE	DIRECTEUR DE THÈSE
MR SERGE MORA	CO-DIRECTEUR DE THÈSE
MR MATTEO CICCOTTI	RAPPORTEUR
MME SANDRA LEROUGE	RAPPORTEUR
MME LAURENCE RAMOS	EXAMINATEUR
MME ELISABETH BOUCHAUD	EXAMINATEUR

Laboratoire Charles Coulomb-UMR 5221  
Place Eugène Bataillon 34000 Montpellier



# Remerciements

C'est avec ce manuscrit que s'achèvent mes trois années de thèse au sein du laboratoire Charles Coulomb. Je souhaiterais avant toute chose remercier mes trois directeurs de thèse : Christian Ligoure, Serge Mora et Laurence Ramos, pour m'avoir accueilli et pour leur encadrement tout au long de ma thèse. Leurs nombreux conseils et suggestions m'ont été d'une grande aide et m'ont permis de progresser dans de nombreux domaines. Grâce à eux j'ai pu acquérir une rigueur scientifique qui me faisait défaut et qui, à l'avenir, me sera d'une grande aide. Je remercie mes rapporteurs : Matéo Ciccotti et Sandra Lerouge pour avoir accepté de rapporter ce manuscrit ainsi que Elisabeth Bouchaud pour avoir accepté de faire parti de mon jury.

Je souhaiterais également remercier tout le personnel technique et administratif du L2C pour sa disponibilité et son efficacité. Je tiens en particulier à remercier Jean-Marc Fromental pour m'avoir aidé lors de mes (nombreux) problèmes de rhéomètre ainsi que Ty Phou pour avoir "supporté" ma consommation importante en polymère téléchélique.

Tout au long de cette thèse, j'ai pu constater la bonne ambiance qui règne au sein de l'équipe "Matière Molle" du L2C. Je remercie donc toute l'équipe pour sa bonne humeur et pour les nombreuses discussions animées qui ont égayé les déjeuners durant ces trois années. Je remercie notamment Manouk, Mauricio, Christophe, Luca pour leurs conseils et commentaires.

Cette thèse a été également l'occasion de nombreuses rencontres. Je me souviendrai longtemps de l'escapade italienne avec Elisa, Guilhem et Mohsen à l'occasion d'une conférence. J'ai également une pensée pour mes collègues post doctorant de l'ANR F2F : Frédéric, Aline et Domenico (en espérant qu'il obtienne enfin son poste de permanent). Ainsi que pour mes "colocs" de bureau : Elisa, Cyrille, et Mohsen (bonne chance à lui pour la fin de sa thèse) qui ont supporté ma manière "personnelle" de ranger mes affaires sur mon bureau. Un grand merci également à Guilhem pour les précieux renseignements qu'il m'a donné quand je me posais la question de mon avenir après la thèse, je lui souhaite le meilleur pour son avenir également.

Il m'est impossible d'écrire cette page de remerciement sans citer ma famille, mes parents qui ont toujours accepté mes décisions et m'ont toujours poussé en avant ainsi que ma compagne Sophie qui m'a suivi tout au long de ma route depuis Amiens, et qui m'a soutenu tout au long de la thèse (elle fut d'ailleurs ma lectrice-test lors de la rédaction de ce manuscrit).

Pour finir je souhaiterais dédier ce manuscrit à mes deux filles, Justine et Solène, sans qui tout cela aurait beaucoup moins de sens.

# Table des matières

introduction	4
<b>1 Fractures et instabilités viscoélastiques dans les fluides complexes.</b>	<b>7</b>
1.1 Fragilité et ductilité d'un fluide complexe.	7
1.2 Fractures dans les réseaux transitoires.	10
1.2.1 Fractures sous cisaillement.	11
1.2.2 Fractures en géométrie élongationnelle	15
1.3 Écoulement en bandes de cisaillement dans les gels ductiles	20
1.3.1 Description de l'écoulement en bandes de cisaillement	21
1.3.2 Existence de turbulence élastique	22
1.4 Transition ductile/fragile dans les fluides complexes	24
1.5 Écoulements et fracture de fluides viscoélastiques en géométrie de Hele-Shaw	26
1.5.1 Instabilité de Saffman-Taylor pour des fluides de Maxwell	26
1.5.2 Fracture de fluides complexes en cellule de Hele-Shaw	28
<b>2 Systèmes et méthodes</b>	<b>32</b>
2.1 Systèmes expérimentaux	32
2.1.1 Les microémulsions connectées	32
2.1.2 Les micelles géantes enchevêtrées	35
2.1.3 Les micelles pontées à morphologie variable.	37
2.2 Montage expérimental	41
2.2.1 Description du montage	41
2.2.2 Protocole expérimental	43
2.2.3 Difficultés rencontrées	45
2.3 Techniques d'analyses	48
2.3.1 Extraction de la forme d'un doigt ou d'une fracture	49
2.3.2 Mesure des champs de déplacement : Particule Image Velocimetry	50
<b>3 Transition digitation-fracture dans les microémulsions connectées</b>	<b>54</b>
3.1 Observations expérimentales.	54
3.2 Différence de profils entre doigts et fractures	56
3.2.1 Ajustement parabolique des profils	56
3.2.2 Évolution du rayon de courbure de la pointe avec la vitesse.	57
3.3 Analyse quantitative des champs de vitesse autour des doigts ou des fractures	59
3.3.1 Comportement du gel au voisinage de la pointe d'un doigt et d'une fracture	60
3.3.2 Champ des déplacements autour des doigts ou des fractures	62
3.4 Discussions et interprétations des résultats	70
3.4.1 Pourquoi les fractures sont-elles toujours paraboliques ?	70
3.4.2 Interprétation des différentes vitesses caractéristiques	72
3.4.3 Modélisation des fractures dans le régime $V_{tip} \geq V_{tip}^{CC}$	74
3.4.4 Modélisation des champs de déplacement	81

<b>4</b>	<b>Digitation et fracture dans les micelles pontées à morphologie variable</b>	<b>88</b>
4.1	Transition digitation/fracture en fonction de la microstructure du gel . . . . .	89
4.1.1	Comportement pour des micelles suffisamment courtes. . . . .	89
4.1.2	Influence de la microstructure sur la vitesse de transition . . . . .	91
4.2	Propagation de fractures dans des micelles pontées en régime enchevêtré . . . . .	99
4.2.1	Observations qualitatives . . . . .	100
4.2.2	Biréfringence associée à une pointe de fracture . . . . .	105
4.2.3	Évolution du signal de biréfringence avec la vitesse de pointe de fracture . . . . .	110
<b>5</b>	<b>Caractérisation expérimentale d'une instabilité d'écoulement dans des solutions de micelles géantes</b>	<b>112</b>
5.1	Mise en évidence et description qualitative de l'instabilité . . . . .	113
5.1.1	Description de l'instabilité . . . . .	113
5.1.2	Influence du débit et des paramètres physico-chimiques sur le déclenchement de l'instabilité . . . . .	116
5.1.3	Relations entre l'instabilité et l'écoulement en bandes de cisaillement . . . . .	117
5.2	Caractérisation quantitative de l'instabilité . . . . .	119
5.2.1	Étude de la biréfringence des micelles sous écoulement. . . . .	119
5.2.2	Détermination des champs de déplacement du gel. . . . .	123
5.2.3	Confrontation entre déplacements et signal de biréfringence. . . . .	132
5.3	Interprétations des observations expérimentales . . . . .	133
	<b>Conclusion</b>	<b>136</b>
	<b>bibliographie</b>	<b>138</b>

# Introduction

Les mécanismes de fracture dans les solides sont depuis déjà longtemps un champ de recherche actif en sciences des matériaux. Les phénomènes de fracturation ont déjà été observés dans des fluides complexes, tels que les fondus de polymère, les pâtes, les verres, gels colloïdaux, et les réseaux transitoires polymériques. Cependant, ils restent beaucoup moins documentés que ceux observés dans les solides. Une des raisons est que la notion même de fracture est délicate à définir dans les fluides complexes. En effet, ceux-ci étant des fluides, ils peuvent en tant que tels, accommoder en principe des déformations arbitrairement grandes sans s'endommager (ils coulent).

Néanmoins, comme dans les solides, on observe expérimentalement deux « types » de fracture : fracture solide versus fracture « ductile ». Reste là encore à redéfinir et/ou adapter ces concepts issus de la mécanique des solides à des matériaux liquides. Comment quantifier la fragilité ou la ductilité d'un fluide viscoélastique ? Comment naissent et se propagent des fractures dans un fluide viscoélastique ? Comment la propagation d'une fracture dans un fluide complexe est reliée à la microstructure du fluide organisé ? Comment distinguer une fracture d'une instabilité hydrodynamique ? Ce sont à quelques unes de ces questions que le travail présenté dans ce mémoire tente de répondre.

Pour ce faire, nous avons choisi d'utiliser une classe particulière de fluides complexes : des gels transitoires auto-assemblés « modèles » que sont, des microémulsion de nano-gouttelettes d'huile dans l'eau connectées par des polymères téléchéliques (microémulsions connectées), des solutions de micelles géantes de tensioactifs enchevêtrées ainsi qu'un système mixte pseudo-ternaire constitué d'une solution de micelles de morphologie contrôlable (sphères-> cylindres-> vers) qui sont pontées réversiblement par des polymères téléchéliques (micelles pontées). Ces fluides modèles ont, en effet, l'avantage d'être des solutions à l'équilibre thermodynamique, d'avoir des structures très bien caractérisées et de présenter des réponses rhéologiques linéaires très simples (fluides de Maxwell à un ou deux modes suivant le système étudié). Des études récentes antérieures à cette thèse au laboratoire Charles Coulomb ont montré par exemple que les microémulsions connectées ont un comportement fragile : elles se fracturent dans le régime où la réponse rhéologique est linéaire, tandis que les solutions de micelles géantes, rhéofluidifiantes et exhibant du shear banding, fractureront au-delà de ce régime linéaire : elles sont ductiles ; enfin les micelles pontées peuvent exhiber les deux types de fractures suivant leur morphologie.

Nous avons choisi une géométrie de cellule Hele-Shaw radiale pour étudier les phénomènes de fracture dans ces fluides complexes modèles : en injectant une huile de viscosité beaucoup plus faible que celle du gel viscoélastique, on observe en fonction du débit d'injection de l'huile, des motifs de digitation visqueuse caractéristiques d'une instabilité de Saffman-Taylor à bas débits et des motifs de fracture à plus haut débit.

Une cellule de Hele-Shaw consiste en deux plaques de verre parallèles, très rapprochées l'une de l'autre dans lesquelles on peut injecter un ou plusieurs fluides. Cette géométrie peut être utilisée comme un modèle bidimensionnel d'un milieu poreux. Historiquement cette géométrie a été utilisée pour étudier des instabilités hydrodynamiques telles que l'instabilité de Saffman-Taylor.

L'instabilité de Saffman-Taylor est une instabilité qui apparaît lorsque l'on injecte un fluide peu visqueux dans un fluide de viscosité plus grande dans un canal de faible dimension. Cette instabilité existe également dans le cas de fluides viscoélastiques. Néanmoins des comportements plus complexes peuvent apparaître, en particulier des motifs ressemblant à des fractures. La géométrie de Hele-Shaw possède plusieurs avantages pour l'observation de fracture. Elle permet l'observation quasi-bidimensionnelle de fracture. En faisant varier le débit d'injection nous étudierons la transition



entre un régime de digitation visqueuse et un régime de fracture, puis la propagation de fractures pour les différents réseaux transitoires mentionnés plus haut.

Ce mémoire est divisé en cinq chapitres :

Dans le chapitre 1, nous allons présenter l'état de l'art sur les travaux expérimentaux concernant l'observation de fracture dans les fluides complexes et plus particulièrement dans les réseaux transitoires. Nous présenterons en particulier la notion de fracture fragile et ductile d'un fluide viscoélastique. Les différentes géométries de fracture : fracture sous cisaillement, fracture en géométrie élongationnelle et fractures en cellule Hele-Shaw sont détaillées.

Le chapitre 2 est consacré à la structure des différents réseaux transitoires utilisés ainsi qu' à leurs propriétés rhéologiques. Nous décrirons également le montage expérimental et les différentes méthodes d'analyse développées pour quantifier nos observations.

Dans le chapitre 3 en utilisant des microémulsions connectées, nous décrirons la transition digitation/ fracture ainsi que la propagation d'une fracture dans ce type de gel en analysant à la fois, les profils des interfaces en pointe d'instabilité (doigt ou fracture), ainsi que le champ de déplacement au voisinage de cette interface ; nous comparerons les champs de déplacements autour d'une pointe de fracture aux champs attendus dans le cas de la fracture d'un matériau purement élastique.

Le chapitre 4 se concentrera sur le système de micelles de morphologies variables pontées par des chaînes téléchéliques. Nous étudierons l'influence de la morphologie des nœuds du réseau transitoire du gel qu'on fera varier, sur la transition digitation/fracture. L'observation entre polariseurs et analyseurs croisés de zones biréfringentes autour des pointes de fracture constituera une première mise en évidence quantitative des zones de process associées au caractère plus ou moins ductile de la fracture.

Enfin le chapitre 5 décrit une instabilité d'écoulement originale et spectaculaire observée en lumière polarisée lorsqu'on injecte en cellule Hele-Shaw radiale une solution de micelles géantes enchevêtrées dans elle-même.

# Chapitre 1

## Fractures et instabilités viscoélastiques dans les fluides complexes.

Dans ce chapitre introductif, nous allons présenter les points essentiels à la compréhension de la problématique de la fracture dans les fluides complexes et plus particulièrement des réseaux transitoires. Nous commencerons ainsi par décrire la notion de fragilité et de ductilité dans les fluides complexes avant de présenter différents travaux expérimentaux sur la fracture de réseaux transitoires. On décrira pour finir les problématiques particulières liées à la configuration expérimentale que nous avons choisi dans cette étude : l'écoulement en cellule radiale de Hele-Shaw. Ce chapitre est basé en grande partie sur deux articles de revue [1][2].

### 1.1 Fragilité et ductilité d'un fluide complexe.

La possibilité qu'ont les fluides viscoélastiques de fracturer a été rapportée pour la première fois dans les années 1960 par Hutton qui a mis en évidence l'apparition de la fracture sous cisaillement dans les fondus de polymères [3]. Néanmoins la fracture dans les liquides est beaucoup moins documentée que la fracture de matériaux solides. Buehler [4] propose la définition suivante de la fracture : "At a fundamental level, fracture of a material due to mechanical deformation can be understood as dissipation of elastic energy into breaking of chemical bonds and heat." Toutefois cette définition reste ambiguë pour des fluides, car elle ne distingue pas "fracture vraie" et fragmentation de liquides due à des instabilités hydrodynamiques [5]. Ligoure et Mora [1] proposent la définition suivante qui lève cette ambiguïté : "the fracture of a fluid due to mechanical deformation, including flow, can be understood as a dissipation of bulk elastic energy into breaking of physical or chemical bonds." En effet, celle-ci exclut les instabilités hydrodynamico-capillaires observées dans les fluides purement visqueux ou parfaits de ce champ, car dans ce cas l'énergie élastique qui entre en jeu dans le mécanisme est purement interfaciale. Ductilité et fragilité sont reliés à la nature des mécanismes de fractures dans les solides sous contrainte, lorsque des dommages irréversibles apparaissent. Nous pouvons classer les matériaux solides en deux familles :

- Les solides fragiles qui fracturent, soudainement, dans le régime élastique au-delà d'une contrainte critique et présentent des surfaces de fracture très nettes.
- Les solides ductiles qui vont se déformer plastiquement avant la rupture. La ductilité implique l'existence de réarrangements à l'échelle locale du matériau sous contrainte bien qu'en moyenne la structure microscopique reste conservée.

La figure 1.1, donne une représentation schématique de l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation. Si la fracture intervient à la sortie du régime où la contrainte varie de linéairement avec la déformation (figure 1.1(a)) alors le solide est fragile. Si au contraire la fracture intervient dans la partie non linéaire de l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation (figure 1.1(b)),

c'est-à-dire dans le régime où le solide répond de manière plastique à une déformation alors on parle de solide ductile.

Parler de fracture fragile pour des fluides semble être a priori paradoxal, dans la mesure où, comme tous les liquides, les fluides viscoélastiques accommodent toute déformation arbitrairement grande après un temps de relaxation fini. Dans ce sens, ils sont infiniment ductiles.

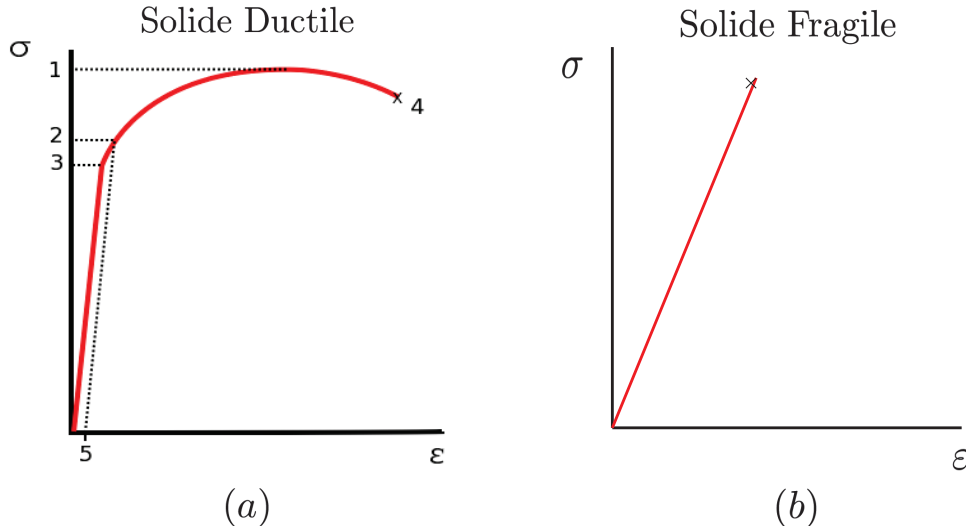


FIGURE 1.1 – Représentation schématique de l'évolution de la contrainte nominale en fonction de la déformation pour deux types de solides ductile (a) et fragile (b) lors d'un test de traction.

Nous allons nous focaliser sur différents types de réseaux transitoires (présentés au chapitre 2), qui constituent une classe spécifique de fluides viscoélastiques exhibant des propriétés de fractures différentes.

Tabuteau et al. [6], ont observé à partir d'expériences de rupture de gouttes pendantes (géométrie extensionnelle) les modes de fractures de deux fluides viscoélastiques de structures différentes : des microémulsions connectées (figure 1.2(a)) et des solutions de micelles géantes (figure 1.2(b)). Les propriétés de fracture de ces deux fluides sont très différentes en dépit de propriétés rhéologiques linéaires identiques (figure 1.3). En effet, les deux fluides sont des fluides de Maxwell dont on peut ajuster la physico-chimie pour qu'ils présentent le même module de cisaillement et le même temps de relaxation. Dans le cas d'une microémulsion connectée (ce système est présenté plus en détail au chapitre 2), la figure 1.2(a) montre une rupture « fragile », et soudaine du filament qui tient la goutte. Au contraire, un système de micelles géantes (présentées elles aussi au chapitre 2), ne va pas rompre par une fracture nette mais plutôt par un amincissement (necking) progressif de la goutte sous son poids comme le suggère la figure 1.2(b).

De même, en appliquant des taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , les deux systèmes présentés par Tabuteau et al. [6] présentent des propriétés rhéologiques linéaires identiques mais leur comportement rhéologique non-linéaire est très différent comme le montre la figure 1.4. Dans le cas de microémulsions connectées, le comportement sous cisaillement reste linéaire jusqu'à un taux de cisaillement critique au-delà duquel le gel va se fracturer, provoquant une chute brutale de la contrainte de cisaillement et de la première différence de contrainte normale (Fig. 1.5). Dans le cas de solution de micelles géantes, au-delà de ce taux de cisaillement critique nous observons l'apparition d'un plateau dans l'évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement, ce plateau de contrainte est une caractéristique d'un écoulement en bande de cisaillement [2]. D'autres auteurs [7] rapportent aussi des expériences de fractures sous cisaillement d'autres gels physiques fragiles.

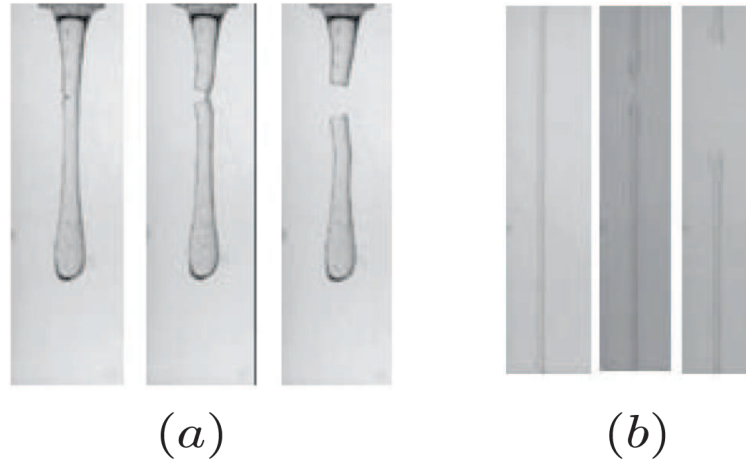


FIGURE 1.2 – Succession d’images montrant la chute d’une goutte de fluides viscoélastiques sous l’effet de la gravité. (a) Pour des microémulsions connectées. Les clichés sont pris avec un intervalle de 10 ms. (b) Pour des solutions de micelles géantes. Les clichés sont pris respectivement à 0 ms (cliché le plus à gauche), 66 ms, et 67 ms. D’après [6]

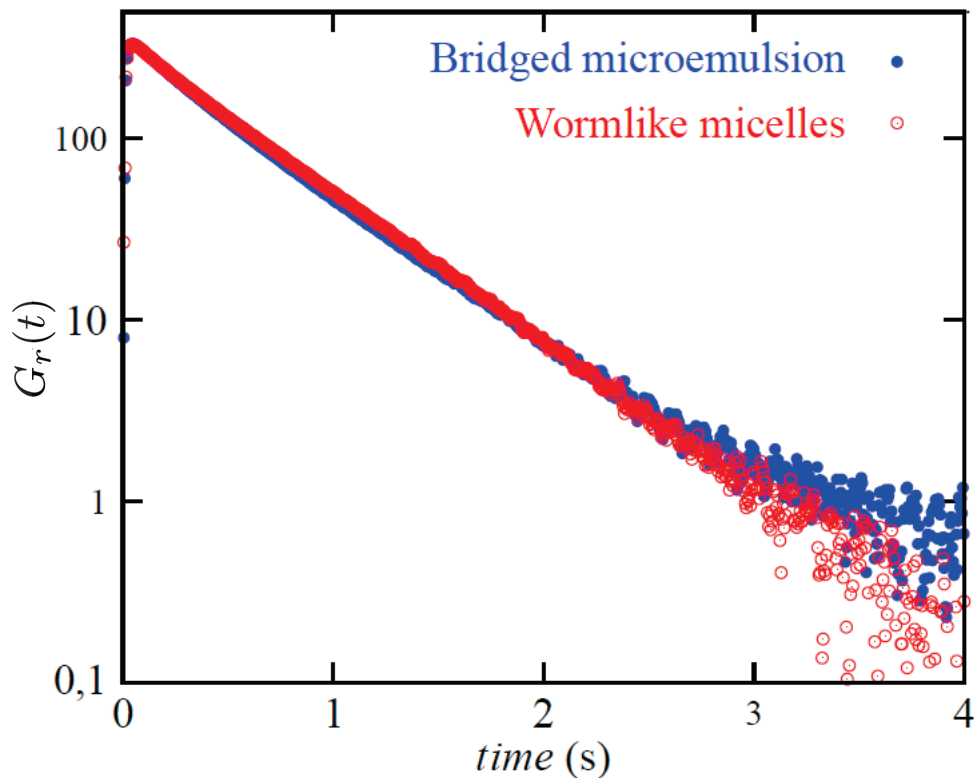


FIGURE 1.3 – Relaxation de la contrainte de cisaillement  $G_r(t)$  en fonction du temps pour les types de réseaux transitoire observés dans la figure 1.2. En rouge, une solution de micelles géantes. En bleu, des microémulsions connectées. Les deux gels se comportent tous deux de la même manière dans le régime linéaire, ce sont des fluides de Maxwell. Ils possèdent un module de cisaillement  $G_0$  et un temps de relaxation  $\tau$  identiques.

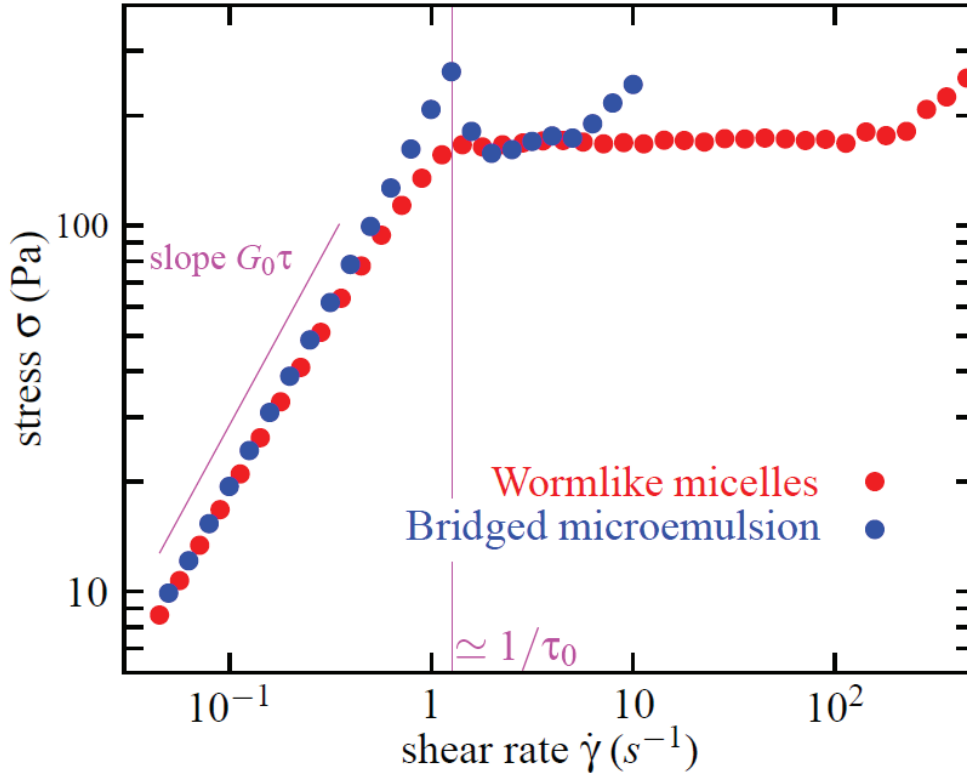


FIGURE 1.4 – Évolution de la contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . En rouge, une solution de micelles géantes. Au-delà de la valeur critique de  $1/\tau$ , un plateau dans l'évolution de la contrainte en fonction du taux de cisaillement apparaît, ce plateau est caractéristique de l'existence de bandes de cisaillement. En bleu, des microémulsions connectées. Au-delà de la valeur de  $1/\tau$ , on mesure une chute de la contrainte relié à l'apparition de fracture dans l'entrefeuille du rhéomètre. La ligne verticale représente le taux de cisaillement critique.

Par analogie avec la définition de fragilité et ductilité dans les solides, nous désignerons les gels exhibant des processus de fracture dans le régime où la réponse du gel est quasi-linéaire comme étant des gels "fragiles" (où la réponse rhéologique non linéaire du gel est similaire au comportement de la courbe bleue de la figure 1.4). A l'opposé, les gels pouvant se réorganiser avant de fracturer seront désignés comme "ductiles" [6].

Nous allons travailler avec différents types de gels possédant des structures différentes. Ces gels ont été choisis de façon à ce qu'ils présentent chacun des différents modes de fractures décrit ci-dessus. A la suite des études précédant cette thèse au sein du groupe [8, 9, 10, 6, 11, 12, 13, 14], nous avons choisi de prendre comme gel "fragile", des microémulsions connectées, comme gel "ductile" des solutions de micelles géantes enchevêtrées ainsi qu'un gel, développé récemment, pouvant exhiber aussi bien les propriétés d'un gel "fragile" que celles d'un gel "ductile" en fonction d'un unique paramètre physico-chimique. Ce dernier système a pour but de pouvoir étudier l'impact de la structure microscopique des gels sur les propriétés de fracture en pouvant passer continument d'un gel "fragile" à un gel "ductile" au sens défini plus haut. La physico-chimie ainsi que les propriétés rhéologiques de chacun des gels étudiés pendant cette thèse seront présentées au chapitre 2.

## 1.2 Fractures dans les réseaux transitoires.

La fracture de réseaux transitoires a été étudiée dans des conditions expérimentales variées. Nous pouvons classer les études de la fracture en fonction de la géométrie de sollicitation appliquée aux

gels. Nous identifions ainsi deux géométries d'étude : la géométrie de cisaillement et la géométrie élongationnelle. Pour chacune des géométries, nous allons présenter les principaux résultats associés à la fracture des différents types de gels présentés plus haut. Une troisième géométrie d'écoulement confiné a été étudiée : la cellule de Hele-Shaw. La géométrie de Hele-Shaw est une géométrie mixte entre cisaillement et élongation quasi-bidimensionnelle. C'est cette géométrie qui a été utilisée au cours de cette thèse. Elle fera l'objet d'une section dédiée à la fin de ce chapitre.

### 1.2.1 Fractures sous cisaillement.

La rhéologie linéaire et non linéaire des réseaux transitoires a été extensivement étudiée. Les sollicitations des fluides peuvent être faites à contrainte imposée ou à taux de déformation imposé. Dans les deux cas, l'objectif est d'accéder au comportement mécanique du matériau au moment de la fracture afin de déterminer quels sont les critères pertinents qui contrôlent l'apparition et la propagation d'une fracture. Pour ce faire, en complément de la rhéologie "classique", un certain nombre d'approches expérimentales ont été développées : mesure des champs de vitesse par vélocimétrie par image de particules ou par corrélation d'images, mesure de la biréfringence sous écoulement afin d'accéder à des informations sur la structure sous écoulement, techniques de diffusion de rayons X aux petits angles, ainsi que des techniques de visualisation directes à l'aide d'une caméra rapide.

#### 1.2.1.1 Fracture à taux de cisaillement stationnaire

Différentes réalisations de réseaux transitoires ont été étudiées, et pour chacun d'entre eux la courbe d'écoulement (c'est-à-dire la mesure de la contrainte de cisaillement stationnaire à taux de cisaillement imposé) a été mesurée. En appliquant un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  constant, la contrainte de cisaillement  $\sigma$  commence par augmenter avec ce dernier. Cette croissance peut être linéaire, indiquant qu'avant l'apparition de la fracture le gel se comporte comme un fluide newtonien [15] [11] [7]. Cette augmentation peut également présenter des comportements plus complexes. Par exemple, il a été observé un régime newtonien suivi d'un régime rhéo-épaississant (où la viscosité augmente quand le taux de cisaillement augmente) [8], ou encore, un régime newtonien suivi d'un régime rhéo-fluidifiant (où la viscosité diminue quand le taux de cisaillement augmente) [12]. Au delà d'un taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma} \approx \tau^{-1}$  où  $\tau$  est le temps de relaxation du fluide, on observe une chute soudaine de la contrainte de cisaillement  $\sigma$  ainsi que la première différence de contrainte normale  $N_1$ . Molino et al. [15] ont été les premiers à suggérer que la chute soudaine de la contrainte de cisaillement pouvait être une signature de la propagation d'une fracture dans l'entrefer du rhéomètre. Tabuteau et al. [11] ont mis en évidence que cet effondrement se produisait quand la première différence de contrainte normale  $N_1$  devient comparable au module de cisaillement  $G_0$  comme le montre la figure 1.5.

Des visualisations directes de la fracturation dans l'entrefer du rhéomètre ont permis de confirmer le lien entre la propagation d'une fracture et la chute de la contrainte de cisaillement. En utilisant une méthode de visualisation de l'écoulement dans une cellule de cisaillement plan-plan montée sur un microscope, Berret et al. [8] ont montré l'existence d'une discontinuité dans le profil des vitesses entre les deux plans de fracture. A bas taux de cisaillement, l'écoulement est homogène dans l'entrefer et la vitesse augmente linéairement du plan immobile vers le plan mobile. Au-delà d'un taux de cisaillement critique, le profil de vitesse exhibe une discontinuité définissant une zone de fracturation où le gel va être fortement cisailé (figure 1.6(a)). En utilisant des techniques d'imagerie par vélocimétrie par corrélation d'image sur une cellule de Couette, Skrzyszewska et al. [7] ont pu approfondir les résultats de Berret et al. en montrant que la zone de fracture a une forme irrégulière qui peut apparaître n'importe où dans l'entrefer. La largeur de cette zone de fracture est d'une centaine de micromètres et augmente avec l'augmentation du taux de cisaillement. L'endroit où cette zone de fracturation apparaît dépend du type de gel et des conditions expérimentales. Pour des gels non adhésifs, elle apparaît sur l'une des parois [8]. C'est également ce qui est observé dans d'autres fluides complexes tels que les pâtes de particules molles [16]. Dans le cas de gels adhésifs [7] ou pour une

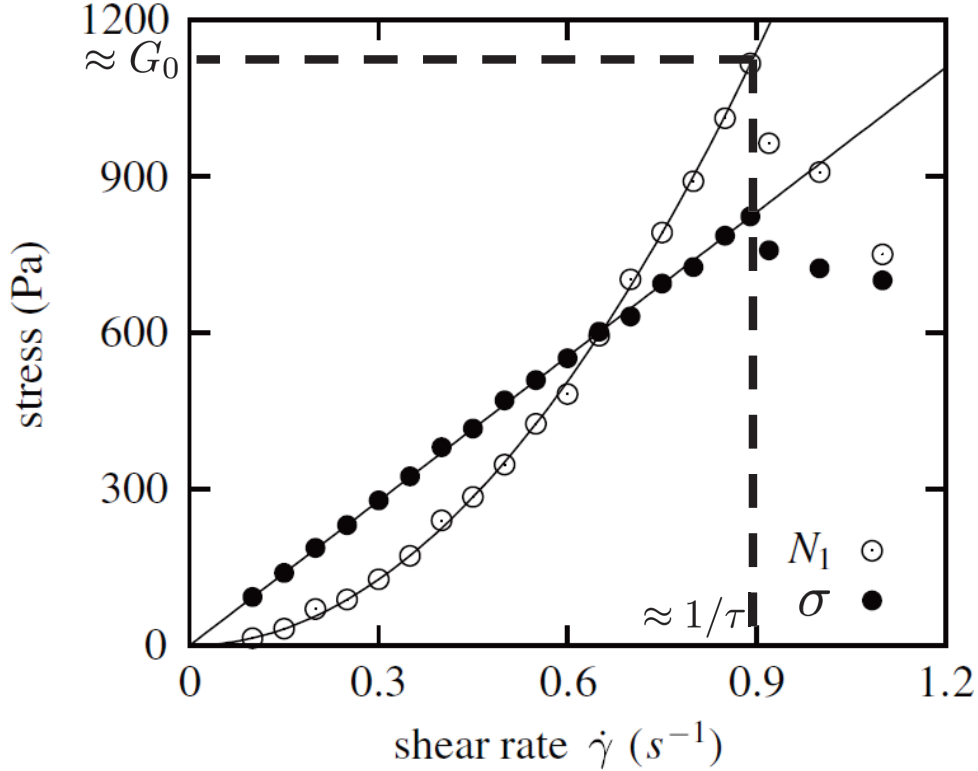
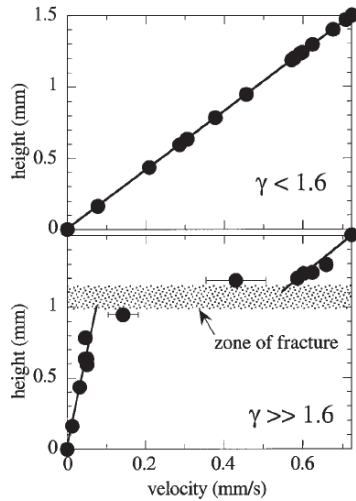


FIGURE 1.5 – (●) Contrainte de cisaillement  $\sigma$ , (○) première différence de contraintes normales  $N_1$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour des microémulsions connectées de module de cisaillement  $G_0 = 1210$  Pa et de temps de relaxation  $\tau = 0.8$  s. On note la chute brutale de la contrainte de cisaillement et de la première différence de contraintes normales pour un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 0.9$  s $^{-1}$ , la première différence de contraintes normales valant  $N_1 = 1190$  Pa.

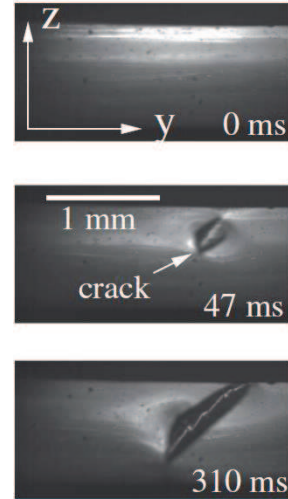
géométrie rugueuse [12], la zone de fracture apparait en volume. En utilisant des techniques de visualisation directe à l'aide d'une caméra rapide (figure 1.6(b)) Tabuteau et al. [11] ont pu montrer dans le cas de microémulsion connectée que cette zone de fracture était orientée à environ 45 ° du plan de cisaillement indiquant que les fractures prennent naissance dans la direction d'extension maximale.

Au-delà du taux de cisaillement critique, de l'ordre de l'inverse du temps de relaxation, des grandes fluctuations de la contrainte de cisaillement ont été observées [17] [12] [13]. Dans certains cas [17], ces fluctuations semblent mener à l'apparition d'un plateau de contrainte apparent rappelant celui observée lors d'écoulement en bandes de cisaillement observée pour une large variétés de fluides complexes comme les micelles géantes enchevêtrées, les suspensions colloïdales, et les solutions de polymères enchevêtrés [18] [19]. Ces fluctuations ont été également observées dans des solutions de micelles géantes enchevêtrées aux grands taux de cisaillement. Via des mesures de vélocimétrie par tracking de particules [20], ces fluctuations ont pu être associées à un comportement de fracture. Pour des solutions de micelles à morphologies variables pontées par des polymères téléchéliques (voir §1.4), Ramos et al. [13] ont montré, en couplant des mesures rhéologiques à des mesures de structures résolues en temps (rhéo-SAXS), que l'écoulement en bandes de cisaillement n'est pas associé à ces fluctuations de la contrainte de cisaillement.

Une manière d'expliquer ces fluctuations a été proposée par Sprakel et al. [17]. L'hypothèse de Sprakel consiste à considérer que ces fluctuations sont la signature d'événements de nucléation de microfissures suivies de refermetures de ces fractures. Il a pu ainsi être montré que la distribution cumulative de la chute de contrainte  $\Delta\sigma$  pendant une fracture se comporte comme :  $\mathcal{P}(> \Delta\sigma) \propto \delta\sigma^{-0.85}$



(a)



(b)

FIGURE 1.6 – Mise en évidence d’une zone de fracture lors d’une expérience de cisaillement. (a) Étude du profil de vitesse entre les parois, la courbe du haut correspond à un écoulement homogène tandis que la courbe du bas présente un écoulement hétérogène associé à l’apparition d’une zone de fracturation, d’après [8]. (b) Observation directe de la propagation d’une fracture lors d’une expérience à taux de cisaillement constant, d’après [11]

où  $\mathcal{P}$  est la distribution de probabilité de la contrainte de cisaillement. L’exposant observé est proche de l’exposant 0.8 attendu dans le cas de mouvement de "stick-slip" [21].

Des simulations numériques pour caractériser la fracture induite par un cisaillement dans des réseaux transitoires de polymères ont été réalisées par Sprakel et al. [22] dont on montre un exemple à la figure 1.7. Si l’on observe des fractures induites par le cisaillement, il a également été observé l’existence d’une transition entre des écoulements en bandes de cisaillement et de la fracturation avec l’augmentation de la concentration en polymère. Ces simulations mettent donc en évidence la difficulté à définir un critère quantitatif discriminant l’écoulement en bandes de cisaillement de la fracture. Sprakel et al. [22] ont observé une discontinuité de la première différence de contrainte normale  $N_1$ . Cette discontinuité a été observée expérimentalement lors de l’apparition de fractures sous cisaillement [11] [12]. Au contraire, pour des systèmes présentant des écoulements sous forme de bandes de cisaillement, cette discontinuité n’est pas observée et  $N_1$  croît avec le taux de cisaillement comme prédit théoriquement pour des solutions de micelles géantes [23]. La chute de la première différence des contraintes normales apparaît donc comme un critère significatif de la fracturation induite par un cisaillement.

Ceci est en accord avec cette règle générale :

- Ce sont les contraintes normales qui pilotent les processus de fracture.
- Au contraire, les contraintes tangentielles pilotent les réarrangements plastiques.

### Fracture à contrainte imposée.

Une autre manière d’étudier la fracture de ces gels est d’appliquer une contrainte de cisaillement constante et de suivre l’évolution temporelle du taux de cisaillement en fonction du temps. Au-delà d’une contrainte de cisaillement  $\sigma_c$  telle que :  $\sigma_c \approx G_0$ , la fracture intervient immédiatement et



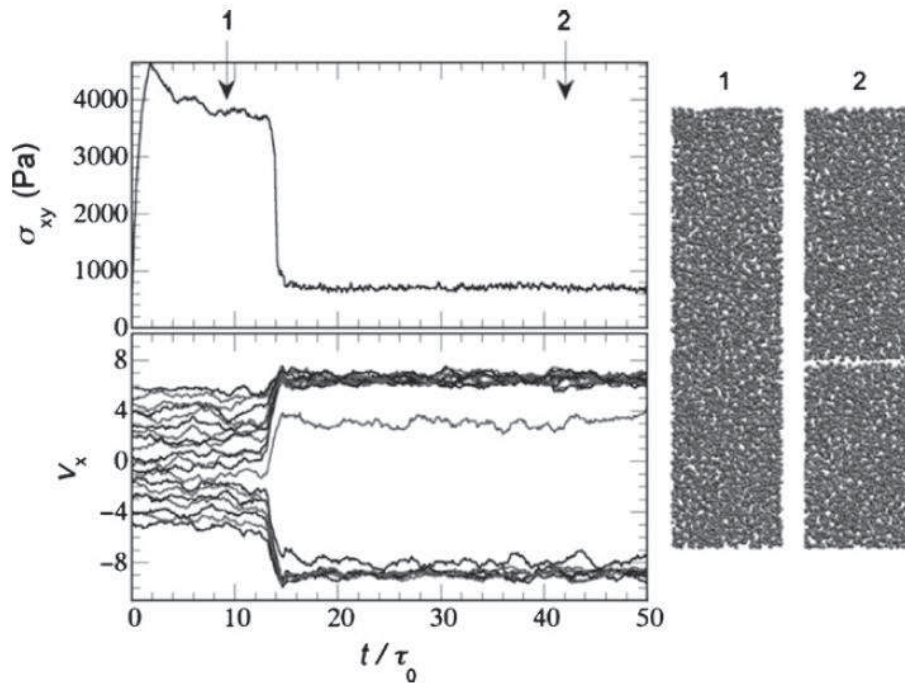


FIGURE 1.7 – À gauche, réponse transitoire de la contrainte de cisaillement à taux de cisaillement imposé (graphe du haut) et profil de vitesse correspondant (graphe du bas), chaque ligne représentant la vitesse locale du fluide à une position donnée dans la direction du gradient de vitesse. À droite, représentation de la boîte de simulation, la première image représentant l'état initial et la seconde l'état fracturé final. L'écoulement s'effectue de gauche à droite avec un gradient de vitesse orienté du haut vers le bas. D'après [22].

se caractérise par une augmentation très importante du taux de cisaillement mesuré. Néanmoins, il a été constaté [7] que l'on pouvait voir apparaître des fractures pour des contraintes inférieures à  $\sigma_c$  si on applique cette contrainte pendant un temps suffisamment long (figure 1.8). La notion de fracture retardée est un phénomène très documenté dans le cas de solides [24] [25], et observé dans une grande variété de systèmes [26] [27] [28] [29]. Le temps d'attente  $t_b$ , varie fortement d'une expérience à l'autre, ce qui montre le caractère stochastique du phénomène. Néanmoins, la valeur moyenne du temps d'attente  $\langle t_b \rangle$  dépend de la contrainte de cisaillement appliquée. Au fur et à mesure que la contrainte de cisaillement décroît, le temps moyen  $\langle t_b \rangle$  d'attente devient de plus en plus long. Dans le cas de réseaux transitoires, plusieurs interprétations possibles ont été proposées et sont détaillées dans l'article de revue [1].

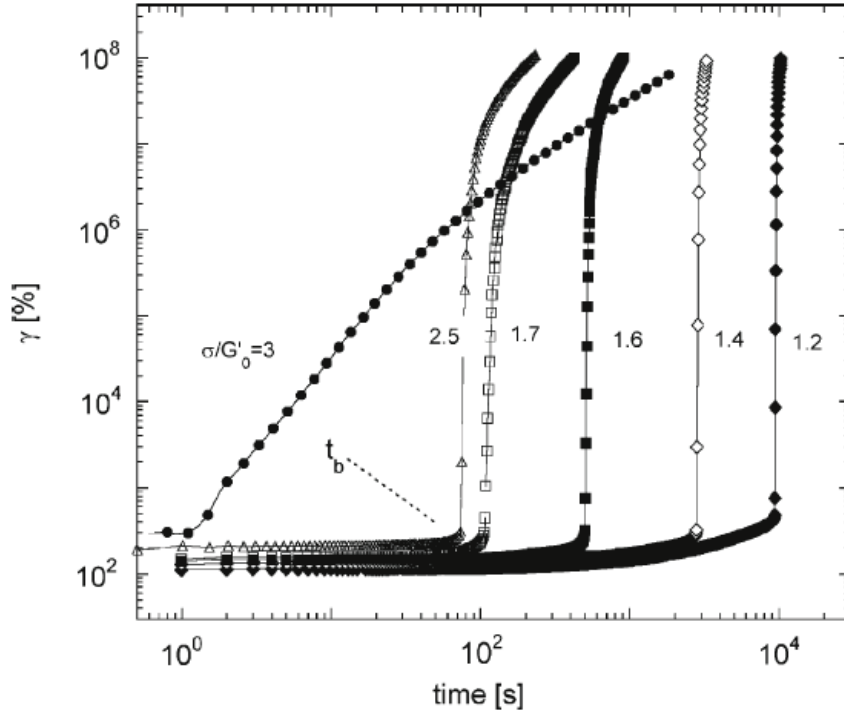


FIGURE 1.8 – Fracture retardée d’un réseau transitoire formé de polypeptides téléchéliques pour différentes contraintes appliquées. A l’issue d’un certain temps d’attente, qui varie d’une expérience sur l’autre, une fracture apparaît dans le gel. D’après [7]

## 1.2.2 Fractures en géométrie élongationnelle

### 1.2.2.1 Rhéologie par extension de filament

Le développement récent de rhéomètres extensionnels a permis de rendre possible l’étude de réseaux transitoires. La figure 1.9, montre une expérience d’étirement sur un gel transitoire de polymères associatifs [30].

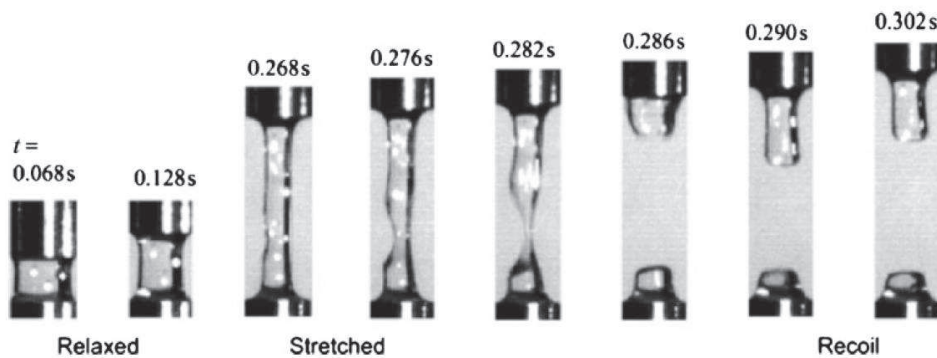


FIGURE 1.9 – Succession d’images montrant la rupture d’une solution de polymères associatifs pour un taux de déformation constant de  $\dot{\epsilon} = 3\text{s}^{-1}$ , d’après [30].

En faisant varier le taux d’élongation  $\dot{\epsilon}$ , il a été observé deux modes de rupture distincts. Si la concentration en polymère est suffisamment faible, et quand le taux d’élongation, autrement dit le nombre de Deborah (ce nombre étant défini par la relation  $De = \tau\dot{\epsilon}$ ), sont élevés on observe la

nucléation d'un défaut dans le filament qui va se propager très rapidement dans le filament provoquant la rupture de celui-ci. Un exemple de ce phénomène est montré à la figure 1.9. On remarque sur ces images qu'aucun amincissement n'est observé avant la fracture signifiant que le phénomène est d'origine élastique (l'amincissement étant lié à de l'écoulement dans le filament). Ce mode de fracturation a également été observé pour d'autres types de gels, des fondus de polymères [31], et des solutions de micelles enchevêtrées [32] [33].

Dans le cas contraire, si la concentration en polymère est plus élevée et que le taux d'élongation et le nombre de Deborah sont suffisamment faibles, le filament rompt par un processus d'amincissement suivi d'une instabilité viscocapillaire provoquant un "pincement" du filament qui provoque la rupture terminale du filament. Un exemple d'amincissement de filament est montré à l'image 1.10.

Ces deux modes distincts de rupture : rupture élastique et amincissement suivi d'un pincement, observés dans les réseaux transitoires et plus généralement dans les solutions de polymères rappellent la différence de comportement entre une fracture fragile et une fracture ductile que l'on a discuté au début de ce chapitre (section 1.1) et que nous développerons dans la section 1.4.

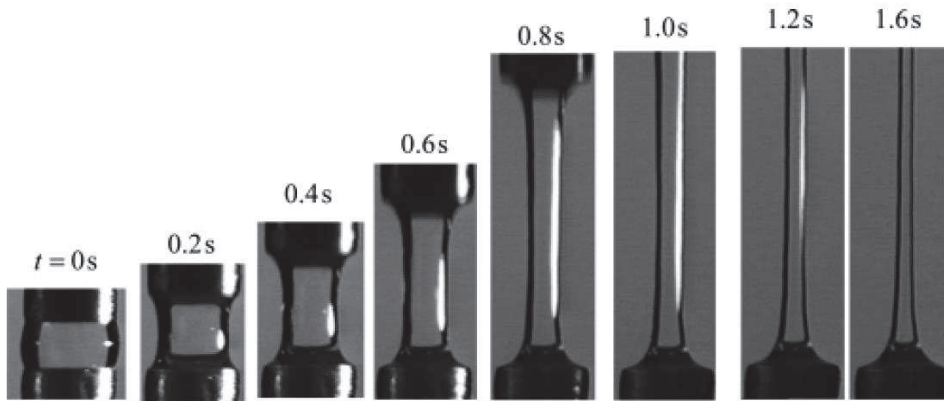


FIGURE 1.10 – Amincissement dans une solution de polymère associatif pour un taux d'élongation  $\dot{\epsilon} = 3 \text{ s}^{-1}$ . En comparaison de la figure 1.9, la concentration en polymère est deux fois plus grande dans le cas de cette solution. D'après [30]

Des explications alternatives de type purement rhéologiques (instabilités dans les lois de comportement de ces fluides) ont été proposées pour interpréter ce phénomène de necking par analogie avec le critère de Considère [34] pour les solides. Toutefois, cette approche reste sujette à caution [35].

### 1.2.2.2 Fracture de gouttes pendantes

Tabuteau et al. [14] ont étudié la nucléation et la propagation de fracture dans des gels "fragiles" (ils ont utilisé des microémulsions d'huile dans l'eau connectées par des polymères téléchéliques présentés de façon détaillée au chapitre 2) en utilisant un dispositif de gouttes pendantes. L'expérience consiste à former une goutte qui va chuter sous l'action de son poids formant un filament qui pourra éventuellement se fracturer.

La figure 1.11 montre la propagation d'une fracture dans un filament. En mesurant l'évolution temporelle du rayon minimal du filament et la masse  $m$  de gel se détachant du filament lors de la rupture, ils ont pu déterminer la contrainte à la rupture  $\sigma_f$ . En mesurant cette contrainte pour différents gels de modules de cisaillement identiques mais de temps de relaxation différents, les auteurs ont pu montrer que cette contrainte à la rupture ne dépend que du module d'Young du gel.

La rupture du filament se produit dans le régime où la réponse rhéologique est linéaire pour une

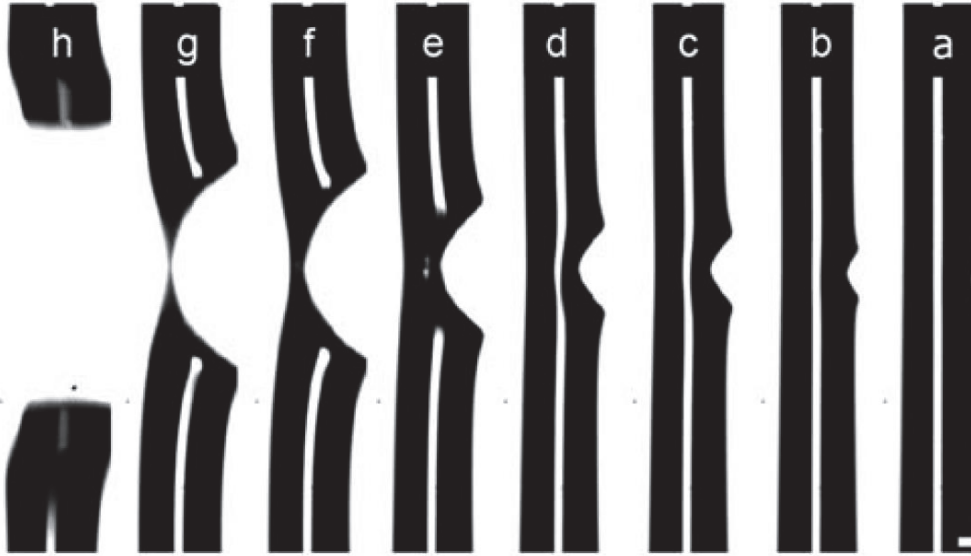


FIGURE 1.11 – Succesion d’images montrant la propagation d’une fracture le long d’un filament de réseau transitoire. Le temps restant avant la rupture complète est représenté par les lettres sur chaque image : (a)  $t = 8.5$  ms, (b)  $t = 5.16$  ms, (c)  $t = 2.67$  ms, (d)  $t = 2.0$  ms, (e)  $t = 1.0$  ms, (f)  $t = 0.33$  ms, (g)  $t = 0.17$  ms ; (h)  $t = 0$  ms. Barre 0.1 mm, d’après [14].

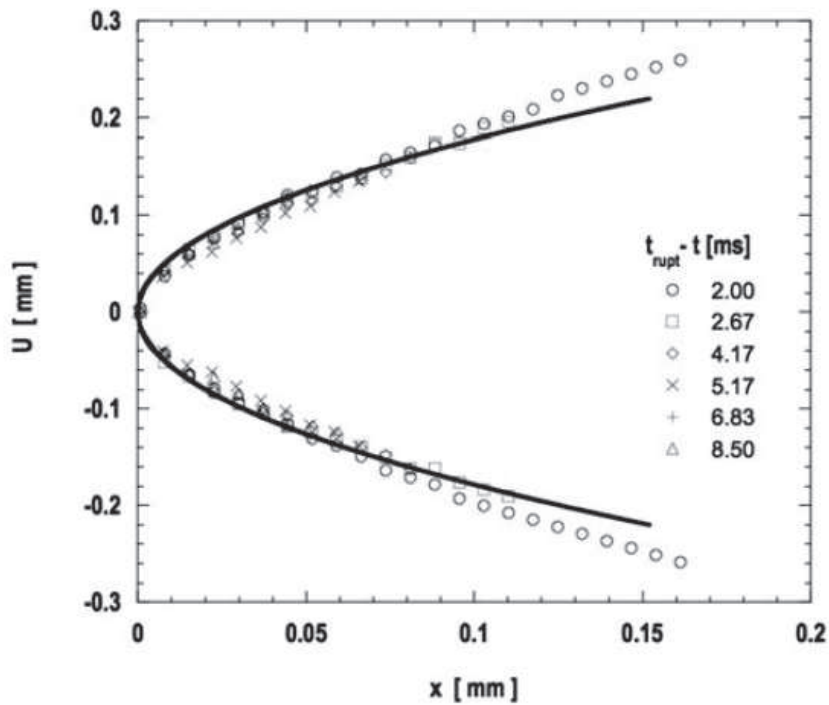


FIGURE 1.12 – Profil d’ouverture d’une fracture dans une goutte pendante. Chaque symbole correspond à un profil correspondant aux images de la figure 1.11. La ligne en trait plein correspond à l’ajustement des données par un profil parabolique, d’après [14]

contrainte  $\sigma_f \approx G_0$ . Cette valeur particulière de la contrainte peut être interprétée de façon quantitative par le modèle de la fracture thermiquement activée [11]. Le point clef dans la compréhension du mécanisme de nucléation de fracture est le caractère réversible des liens du réseau transitoire et

de la très faible énergie libre interfaciale nécessaire pour créer une fracture. La tension interfaciale, de l'ordre de quelques  $\mu\text{N}/\text{m}$  [36], responsable de la nucléation de la fracture est due à une perte d'entropie de configuration au voisinage de la surface de fracture (figure 1.13) .

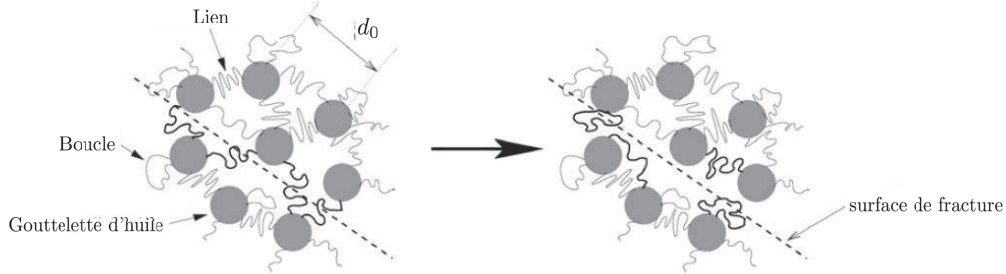


FIGURE 1.13 – Représentation schématique d'une microémulsion connectée. Le polymère téléchélique peut soit relier deux gouttelettes d'huile soit former une boucle sur une gouttelette. À gauche, avant la nucléation de la fracture, les polymères peuvent lier des gouttelettes de part et d'autre de la ligne en pointillée. Quand la fracture apparaît, les polymères ne peuvent plus former des liens que de part et d'autre de la ligne en pointillée, d'où la perte de configurations accessibles à l'origine de la tension interfaciale de déplétion.

À l'aide d'une caméra rapide, les auteurs ont filmé la nucléation et la propagation d'une fracture (figure 1.11). En mesurant le profil d'ouverture pour différentes longueurs de propagation, ils ont pu montrer que le profil d'ouverture est parabolique (figure 1.12) en accord avec le profil attendu pour la fracture d'un solide élastique sous tension [37]. Les fractures observées par Tabuteau et al. se propageant rectilignement, ils ont pu modéliser le profil par la relation :

$$u(x) = a\sqrt{x} = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{8x}{\pi}} \quad (1.1)$$

Où  $E$  est le module d'Young du gel,  $\nu$  le coefficient de Poisson, et  $K_I$  le facteur d'intensification des contraintes. Ce facteur peut être relié au taux de restitution d'énergie  $G$  par la relation :

$$G = \frac{K_I^2}{E(1-\nu^2)} \quad (1.2)$$

L'équation 1.2 est reliée à l'énergie de fracture. Néanmoins dans les solides "mous" de grandes déformations s'appliquent sur la pointe de fracture. La description de ses grandes déformations se modélise à l'aide de théories de l'élasticité finie [38] pour pouvoir décrire de façon correcte la fracture. L'aspect non-linéaire du problème requiert que l'énergie de fracture soit estimée par la méthode de l'intégrale  $J$  [39]. En supposant que le gel peut être décrit comme un solide néo-Hookéen (le détail de ce calcul n'est pas explicité ici, voir l'annexe 1 de la référence [14] pour plus de détails) nous pouvons relier l'énergie de fracture au rayon de courbure de la pointe de fracture :

$$J = \frac{\pi G_0 a^2}{4} \quad (1.3)$$

Où  $G_0$  est le module de cisaillement du gel et  $a$  le paramètre de la parabole définie dans l'équation 1.1. L'énergie de fracture  $J$  va être reliée au taux de restitution de l'énergie  $G$  par la relation :  $J = G$ .

L'énergie de fracture  $G$  a été mesurée en fonction du temps restant à la rupture complète du filament (autrement dit en fonction de la longueur de la fracture). Ce qui a permis d'identifier deux régimes de variation de l'énergie de fracture :

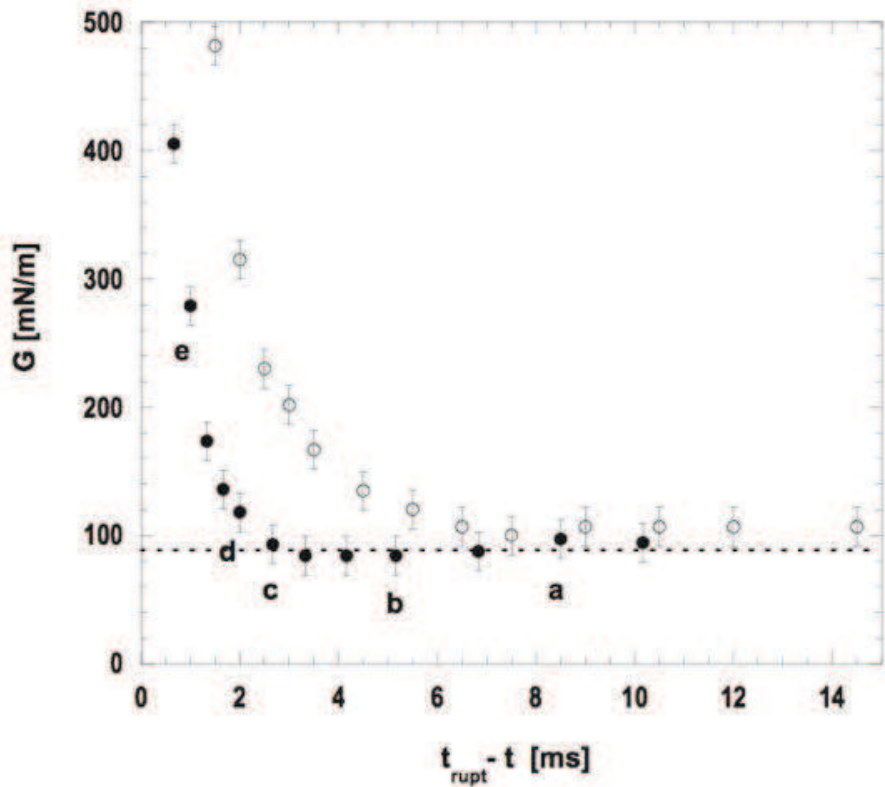


FIGURE 1.14 – Évolution de l'énergie de fracture en fonction du temps restant avant que la fracture ne se soit propagée sur tout le filament. Les deux symboles correspondent à deux microémulsions de même module de cisaillement mais de temps de relaxation différents d'un facteur 3. La ligne pointillée correspond à une énergie de fracture  $G = 2\gamma_s$ . D'après [14].

- Quand  $L < 0.1D_0$ ,  $D_0$  étant la longueur totale du filament, l'énergie de fracture ainsi que la vitesse de propagation de la fracture sont constantes, et l'énergie de fracture  $G \approx 90 \text{ mJ/m}^{-2}$  soit  $G \approx 2\gamma_s$  où  $\gamma_s$  est la tension de surface de la microémulsion mesurée indépendamment en l'absence de liens polymériques :  $\gamma_s \approx 45 \text{ mJ/m}^{-2}$ .
- Quand  $L > 0.1D_0$ , Le modèle permettant de déterminer l'énergie de fracture n'est plus valable car l'hypothèse d'une fracture en milieu semi-infini n'est plus justifiée.

La vitesse de propagation de la fracture est constante dans le régime où l'énergie de fracture est constante. En dépit du caractère fragile de la propagation de la fracture, la vitesse de propagation de la fracture est très faible devant la vitesse des ondes de Rayleigh attendue pour la fracture d'un solide fragile. Pour justifier cette faible vitesse un modèle théorique a été proposé.

L'hypothèse justifiant l'existence d'une vitesse naturelle de propagation de la fracture est que cette dernière est contrôlée par l'échelle de temps de détachements des liens à la pointe de fracture et par la relaxation élastique, après le relâchement d'un lien, des gouttelettes de microémulsions sous l'action du frottement visqueux du solvant. Le schéma 1.15 représente un événement de relâchement d'un lien.

A la pointe de la fracture, à l'instant précédant le détachement d'un lien, une gouttelette va être mise sous tension. Le relâchement de la tension lors de la libération du lien va provoquer une force de rappel sur la gouttelette de microémulsion (gouttelette 1 sur le schéma 1.15). Le mouvement de la gouttelette de microémulsion va se répercuter sur le lien suivant qui va à son tour être étiré jusqu'à

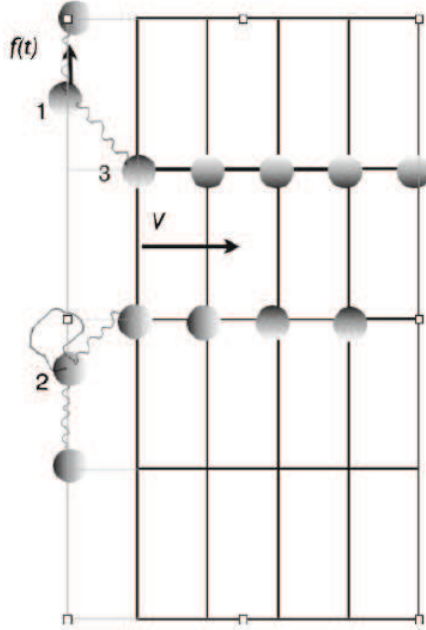


FIGURE 1.15 – Représentation schématique de la déformation en pointe de fracture. Le lien entre les gouttelettes 1 et 2 vient d’être libéré, la gouttelette 1 subit alors une force de rappel  $f(t)$  due au gel sous tension. Cela provoque une tension sur la gouttelette 3 qui va être étirée à son tour avant d’être relâchée. La fracture va se propager ainsi de proche en proche à une vitesse  $V_{tip}$ . D’après [14].

une élongation critique provoquant une nouvelle rupture. La fracture va alors se propager de proche en proche au fur et à mesure que les liens sont étirés et brisés.

A chaque relâchement d’un lien, la fracture va avancer d’une distance  $d_0/\lambda_i$  où  $d_0$  est la distance moyenne entre deux gouttelettes de micro-émulsion et  $\lambda_i$  est l’élongation du réseau à la pointe de fracture. L’échelle de temps d’un relâchement peut être déterminée en égalant la force de rappel élastique ( $f(t)$  sur le schéma 1.15) que l’on peut déterminer à partir d’un modèle de réseau affine donné par la théorie de l’élasticité caoutchoutique [40] à la force de frottement visqueux résultant du déplacement de la gouttelette de microémulsion dans le solvant.

On peut donc estimer la limite supérieure de la vitesse de propagation d’une fracture :

$$V_{tip} \lesssim 0.25 \frac{Ed_0^2}{6\pi\eta_w R_{gouttes}} \quad (1.4)$$

Où  $\eta_w$  est la viscosité du solvant. Pour les fluides étudiés par Tabuteau et al. [14], les valeurs de vitesse de propagation sont en accord avec l’inégalité 1.4.

### 1.3 Écoulement en bandes de cisaillement dans les gels ductiles

Au début de ce chapitre nous avons discuté l’existence de deux systèmes dont la rhéologie linéaire est identique mais dont les propriétés non linéaires sont très différentes. Les solutions de micelles géantes se démarquent des microémulsions connectées de par leur comportement rhéologique non linéaire très complexe. Au delà d’un taux de cisaillement caractéristique, un écoulement en bandes de cisaillement va apparaître. Dans cette section nous allons rappeler les principales propriétés d’un écoulement en bandes de cisaillement. Pour plus de détails, nous renvoyons vers les articles [2] et [41].

### 1.3.1 Description de l'écoulement en bandes de cisaillement

Quand des solutions de micelles géantes enchevêtrées sont soumises à un cisaillement, si celui-ci est suffisamment fort, elles vont exhiber un comportement non linéaire particulier qui se caractérise par l'apparition d'un plateau de contrainte dans la courbe d'écoulement. Cette instabilité a été mise en évidence pour la première fois par Rehage et al. [42] pour des solutions de micelles géantes enchevêtrées et a été observée expérimentalement pour de nombreux systèmes : phases lamellaires [43] [44] [45], solutions de copolymère tribloc [8] [46], suspensions virales [47], cristaux liquides [48], mousses [49] [50] [51], matériaux granulaires et vitreux [52] [53] [54],...

Cates et al. [55] ont prédit un scénario pouvant expliquer ce plateau dans le cas de solutions de micelles enchevêtrées. Avant l'apparition de l'instabilité, les micelles sont désordonnées et la viscosité de la solution est importante. Sous écoulement, les micelles peuvent s'orienter dans la direction de l'écoulement. A très haut taux de cisaillement, les micelles sont alignées dans la direction de l'écoulement. L'instabilité va se produire pour des taux de cisaillement intermédiaires. L'origine de cette instabilité est un couplage entre la structure microscopique du gel et l'écoulement. Le changement de structure du gel sous écoulement va provoquer une localisation du cisaillement et va produire la séparation du gel en deux couches macroscopiques de structures différentes. On observa ainsi un écoulement hétérogène associé à la coexistence entre une phase de gel désordonnée (de viscosité élevée) et une phase de gel aligné dans la direction de l'écoulement (de viscosité faible) comme le montre la figure 1.16.

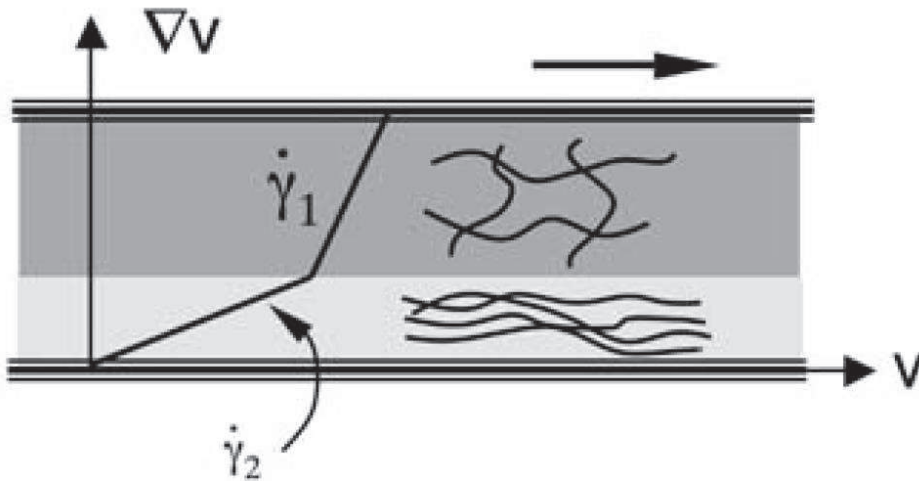


FIGURE 1.16 – Représentation schématique d'un écoulement en bandes de cisaillement dans l'entrefer d'un rhéomètre. D'après [2]

Le schéma proposé par Cates et al. a été vérifié via de nombreuses techniques expérimentales centrées autour de la vélocimétrie (par RMN, PIV, DLS,...) ou du comportement rhéo-optique (Biréfringence sous écoulement, SAXS, SANS, ...). Nous renvoyons vers l'article de revue [2] pour plus de détails concernant les différentes méthodes expérimentales utilisées.

La figure 1.17 présente l'évolution de cette instabilité au fur et à mesure que l'on augmente le taux de cisaillement. On observe l'apparition d'une bande lumineuse (correspondant à la bande où les micelles sont alignées) et d'une bande sombre (qui correspond à la bande où les micelles sont désordonnées) qui va croître avec le taux de cisaillement pour finalement envahir tout l'entrefer du rhéomètre quand on situe au-delà de la gamme de taux de cisaillement pour lesquels le plateau est observé.



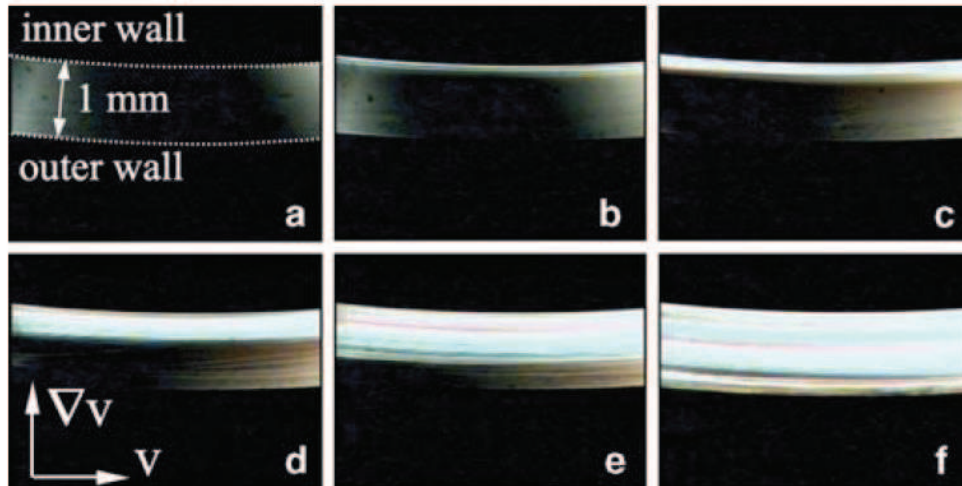


FIGURE 1.17 – Succession d’images à différents taux de cisaillement prises dans l’entrefer d’une cellule de Couette pour une solution de micelles de  $C_pCl$ /Hexanol. L’échantillon est observé à travers polariseur et analyseur croisés. On observe la nucléation (b) puis la croissance d’une bande possédant un signal de biréfringence très intense. Cette bande va finalement couvrir tout l’entrefer du rhéomètre (f). D’après [43]

Nous avons décrit le schéma "classique" de l’instabilité d’écoulement en bandes de cisaillement, c’est-à-dire la rhéologie non linéaire en régime stationnaire. Nous allons maintenant décrire l’existence de turbulence élastique.

### 1.3.2 Existence de turbulence élastique

En étudiant les réponses transitoires de solutions de micelles géantes en fonction du taux de cisaillement, il a été observé des fluctuations de la contrainte de cisaillement [56] [57] [58]. Ces fluctuations peuvent donner lieu à des comportements très complexes où, en fonction du taux de cisaillement appliqué, la contrainte de cisaillement va varier tout d’abord de manière périodique. Au fur et à mesure de l’augmentation du taux de cisaillement, ces fluctuations vont devenir de moins en moins périodiques pour finalement devenir chaotiques.

Ces fluctuations sont également observées à une échelle locale. Une mesure de la biréfringence aux temps longs montre l’apparition de structures (figure 1.18) que l’on peut qualifier de bandes secondaires dont la position fluctue avec le temps [59] [60].

Pour expliquer ces fluctuations, Fardin et al. [41] ont réalisé des observations 2D des bandes de cisaillement dans le plan du gradient de l’écoulement d’une géométrie de Couette (formée par deux cylindres coaxiaux) [61] [62]. Les auteurs ont ainsi pu montrer que l’écoulement en bande de cisaillement est un écoulement instable, où l’interface entre les bandes ondule le long de la direction de vorticité comme l’illustre la figure 1.19(a). En augmentant le taux de cisaillement le long du plateau de contrainte de la courbe d’écoulement, des motifs de plus en plus complexes ont pu être observés (figure 1.19(b)).

Les viscosités apparentes des différentes bandes sont telles que le nombre de Reynolds est toujours très faible. L’instabilité 3D décrite ci-dessus ne peut donc pas avoir pour origine des effets inertiels. Les instabilités élastiques vont être dominantes quand la première différence des contraintes normales

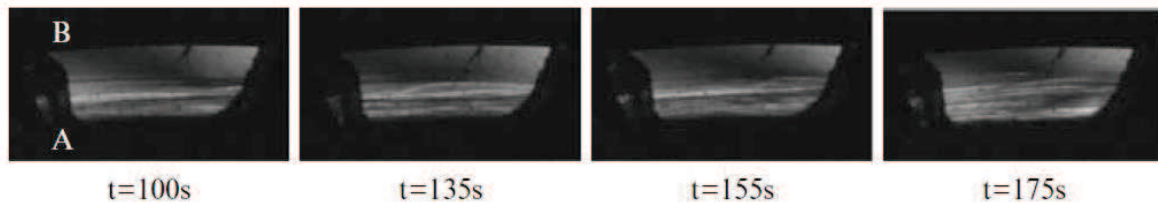
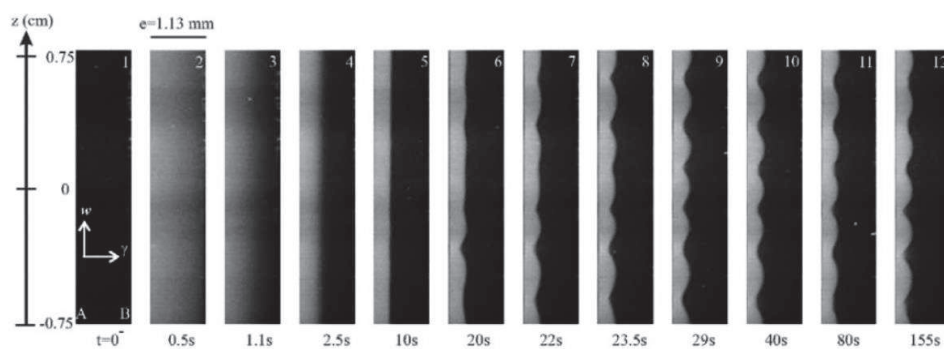
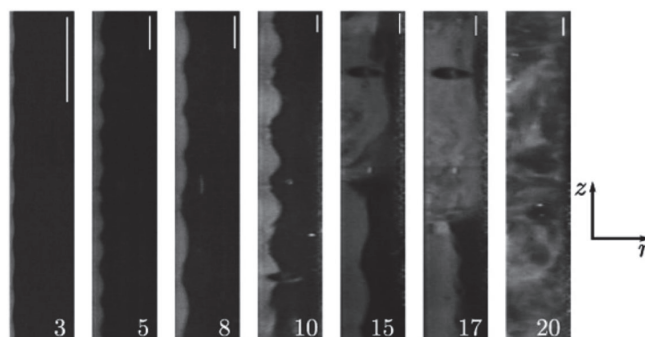


FIGURE 1.18 – Écoulement en bandes de cisaillement d’une solution de micelles géantes dans une cellule de Couette. Les parois de la cellule sont représentées par les symboles A et B. La bande induite par le cisaillement se trouve au niveau de la paroi en rotation A. On remarque que la structure de cette bande est constituée d’une succession de bandes d’intensités différentes, d’après [59].



(a)



(b)

FIGURE 1.19 – Observation de l’entrefer d’une cellule de Couette dans le plan défini par le gradient de vitesse et la vorticité. (a) A différents instants pendant la formation des bandes de cisaillement pour un taux de cisaillement appliqué de  $30 \text{ s}^{-1}$ . Les symboles A et B représentent les parois de la cellule de Couette. D’après [63]. (b) Pour différents taux de cisaillement compris entre  $3 \text{ s}^{-1}$  et  $20 \text{ s}^{-1}$ . On remarque le changement du motif de l’instabilité qui devient de plus en plus irrégulier avec l’augmentation du taux de cisaillement. Barre 1.13 mm. D’après [64]

$N_1$  va devenir importante, c’est-à-dire si le nombre de Weissenberg  $Wi = \tau\dot{\gamma}$  devient grand (pour un fluide parfaitement élastique ce nombre se réduit à  $N_1/\sigma$ ). Le comportement sous écoulement des micelles a été étudié [65] en fonction de ce nombre de Weissenberg. Il a pu ainsi être mise en évidence une structure particulière dans l’écoulement à très haut taux de cisaillement (en dehors du plateau

de contrainte de cisaillement). Cette structure se caractérise par un rhéo épaisissement apparent dû à un changement de structure de l'écoulement qui apparaît irrégulier et très désordonné comme le montre la figure 1.19.

## 1.4 Transition ductile/fragile dans les fluides complexes

Comme défini à la section 1.1, un solide fragile se fracture de manière soudaine dans le régime élastique. Au contraire, un solide ductile va se déformer plastiquement avant de fracturer. La ductilité se caractérise donc par l'existence d'un comportement non linéaire plus ou moins complexe avant la fracturation. Il a été montré que les fondus de polymère peuvent fracturer aussi bien de manière ductile que fragile [66] [67]. A la section 1.2.2, en discutant des modes de rupture d'un filament en géométrie élongationnelle, deux modes de rupture ont été clairement observés. Ces deux modes rappellent la notion de fracture fragile et de fracture ductile des solides. De plus, il a été montré (voir section 1.1) que deux types de réseaux transitoires, se comportant tout deux comme des fluides de Maxwell, allaient avoir des modes de fractures très différents. D'un côté, nous avons les microémulsions connectées, qui fracturent de manière fragile. De l'autre côté, les micelles géantes enchevêtrées, qui se caractérisent par un comportement rhéologique non linéaire complexe que nous avons décrit à la section 1.3.

Pour décrire l'influence de la structure sur les propriétés de fracturation, un nouveau type de réseau transitoire auto-assemblé a été développé. Il s'agit d'un système de micelles de morphologie contrôlable (de sphère à cylindres à vers, voir figure 1.20) pontées par des polymères téléchéliques. Les courbes d'écoulement de ce gel [12] suggèrent que l'on peut définir trois domaines de fracturation associés à la croissance des micelles : une mode fragile, un mode intermédiaire et pour finir, un mode ductile (où l'on va observer un écoulement en bandes de cisaillement tel que décrit à la section 1.3).

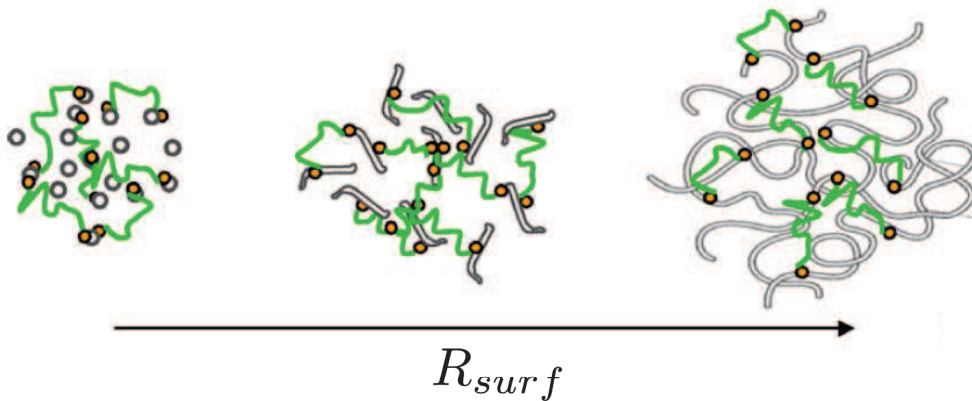


FIGURE 1.20 – Représentation schématique de la structure d'un réseau transitoire dont les noeuds sont de morphologie variable. En fonction du rapport molaire surfactant/cosurfactant la morphologie des noeuds évolue passant de micelles sphériques à cylindriques et finalement vermiculaires. D'après [12].

En réalisant des expériences de rhéologie couplées à des mesures de diffusion de rayons X aux petits angles (Rhéo SAXS), une étude de la structure du gel sous cisaillement a été réalisée. Pour caractériser l'évolution du signal de diffusion avec le taux de cisaillement, les auteurs ont défini le paramètre de contraste comme la différence entre les intensités minimales et maximales du signal diffusé :  $C = (I_{max} - I_{min}) / (I_{max} + I_{min})$ . Ce paramètre  $C$  permet de quantifier le degré d'anisotropie de l'écoulement dans l'entrefer du rhéomètre. Pour un écoulement isotrope  $C = 0$  tandis que

pour un écoulement fortement anisotrope  $C \approx 1$ . Il faut noter que cette quantité évolue avec le taux de cisaillement de la même manière que la contrainte de cisaillement. Pour décrire l'évolution des propriétés de fracture de micelles pontées, deux taux de cisaillement caractéristiques ont été définis.  $\dot{\gamma}_{thin}$  est le taux de cisaillement de sortie du régime linéaire. Ce taux de cisaillement caractéristique correspond également au taux de cisaillement pour lequel la rhéofluidification du gel devient importante, c'est-à-dire quand la viscosité diminue de façon significative avec le taux de cisaillement (courbes grises de la figure 1.21). En suivant l'évolution des fluctuations du contraste  $C$  pour différents taux de cisaillement, on peut remarquer qu'il existe un seuil en taux de cisaillement pour lequel ces fluctuations du contraste  $C$  (symboles noirs de la figure 1.21) deviennent importantes. On pourra interpréter ces fluctuations comme un signe caractéristique de l'apparition de fracture dans le gel,  $\dot{\gamma}_{crack}$  est alors défini comme le taux de cisaillement pour lequel ces fluctuations deviennent importantes (figure 1.21).

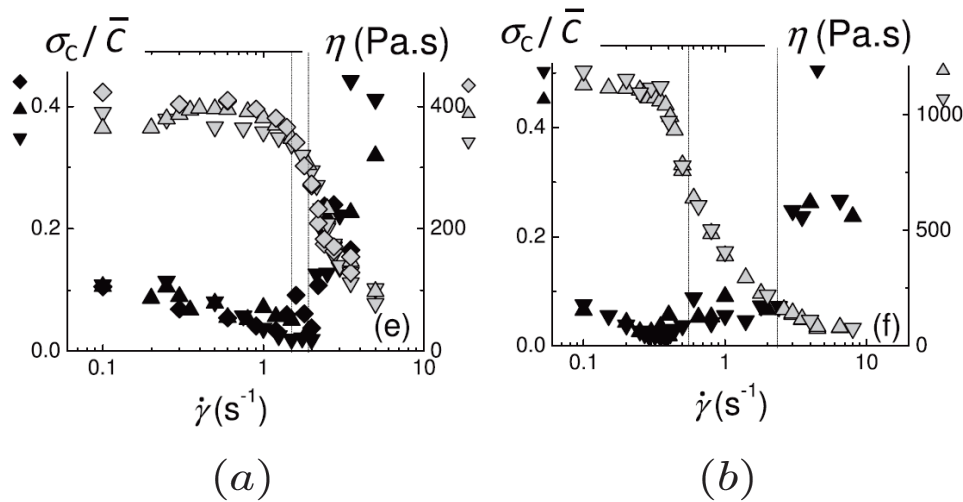


FIGURE 1.21 – Fluctuation du contraste (en noir) et viscosité (en gris) en fonction du taux de cisaillement pour deux valeurs de  $R_{surf}$ . (a)  $R_{surf} = 0.3$ , (b)  $R_{surf} = 0.35$ . D'après [13]

La figure 1.21 montre simultanément l'évolution des fluctuations du contraste et de la viscosité pour deux gels de structures différentes respectivement fragile (figure 1.21(a)) et ductile (figure 1.21(b)). On remarque sur la courbe 1.21(a), que l'augmentation des fluctuations de contraste caractéristique de la fracture et le démarrage de la rhéofluidification apparaissent pour des valeurs du taux de cisaillement très voisines :  $\dot{\gamma}_{thin} \approx \dot{\gamma}_{crack}$ . En revanche, pour la courbe 1.21(b), la rhéofluidification va apparaître pour des taux de cisaillement très inférieurs à l'apparition des fluctuations de la contrainte.

Par analogie avec les solides, un paramètre  $\Delta = (\dot{\gamma}_{crack} - \dot{\gamma}_{thin})/\dot{\gamma}_{thin}$  a été défini. Ce paramètre est équivalent à la quantité de déformation plastique accumulée avant la fracturation. La figure 1.22 représente ce paramètre en fonction de la structure du réseau transitoire (représenté par  $R_{surf}$  qui est le rapport entre la quantité de matière de surfactant et de cosurfactant). Ce paramètre est voisin de l'unité pour les gels définis comme étant fragiles, c'est-à-dire pour lesquels la fracture intervient quand le comportement du gel s'écarte de son comportement linéaire tandis qu'il va devenir beaucoup plus grand quand la fracture va intervenir dans le régime non linéaire. Cela permet de justifier l'analogie avec les fractures fragiles et ductiles dans les solides. Cette courbe permet également de conclure qu'il existe une transition brutale entre un comportement fragile et un comportement ductile en fonction de la structure du gel.

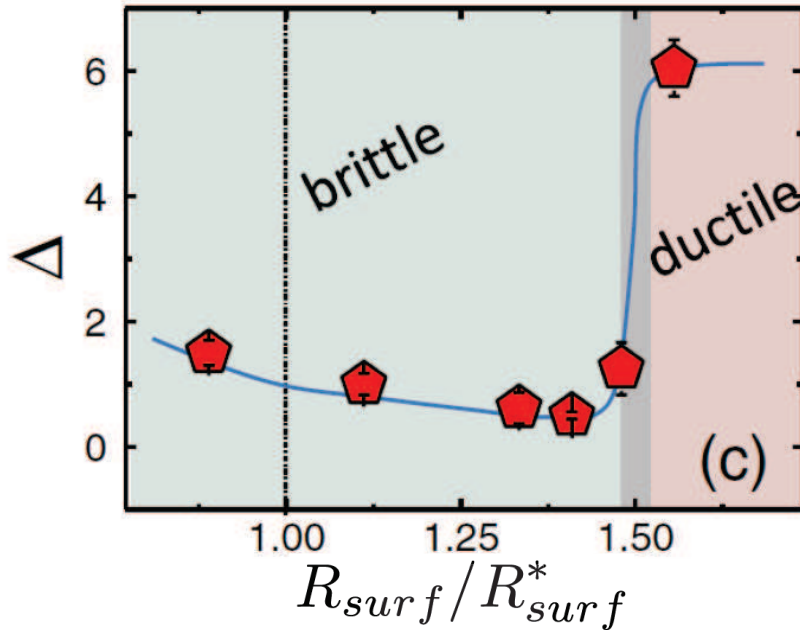


FIGURE 1.22 –  $\Delta$  en fonction de la structure du gel représenté par  $R_{surf}/R_{surf}^*$  ou  $R_{surf}^*$  représente le seuil à partir duquel les micelles sont enchevêtrées. D’après [13].

## 1.5 Écoulements et fracture de fluides viscoélastiques en géométrie de Hele-Shaw

Lorsqu’un fluide visqueux est poussé par un fluide moins visqueux entre deux plans parallèles faiblement espacés, l’interface entre les deux fluides n’est pas stable elle va se déstabiliser en formant des motifs que l’on qualifie de motifs de digitation visqueuse. Cette instabilité résulte d’une compétition directe entre le champ de pression déstabilisant l’interface entre les deux fluides et la tension de surface stabilisante. Elle a été observée pour la première fois par Saffman et Taylor [68] et a été beaucoup étudiée dans le cas de fluides newtoniens [69]. Cette instabilité apparaît également dans de nombreux fluides non newtoniens [70, 71, 72, 73]

### 1.5.1 Instabilité de Saffman-Taylor pour des fluides de Maxwell

Dans cette thèse, nous avons choisi d’étudier la fracture de matériaux viscoélastiques en cellule de Hele-Shaw radiale. Nous allons notamment nous intéresser à la transition entre une digitation visqueuse (instabilité de Saffman-Taylor) et une fracture élastique.

L’instabilité de Saffman Taylor reste bien plus difficile à décrire pour des fluides non-newtoniens. Mora et Manna [74] [75] [76] ont récemment revisité, aussi bien théoriquement qu’expérimentalement, cette instabilité pour des fluides viscoélastiques spécifiques : les fluides de Maxwell. Nous allons rappeler ici les principaux résultats de leur modèle.

A la différence de l’instabilité de Saffman-Taylor pour un fluide newtonien, dans le cas d’un fluide viscoélastique des effets élastiques peuvent être pertinents si le temps typique d’écoulement est inférieur au temps de relaxation. Autrement les effets élastiques devront être pris en compte dans l’instabilité si le taux de croissance maximal  $\omega_{max}$  de l’instabilité est de l’ordre de grandeur

de l'inverse du temps de relaxation  $\tau$  :  $\omega_{max}\tau \approx 1$ . Cela a conduit les auteurs à définir un temps de relaxation réduit  $\tilde{\tau} \propto \omega_{max}\tau = \frac{e^2(-\nabla P)^{3/2}}{G_0\gamma_s^{1/2}}$ . Où  $e$  est l'épaisseur de la cellule,  $G_0$  le module de cisaillement,  $\gamma_s$  la tension interfaciale entre le fluide pousseur et le fluide viscoélastique et  $\nabla P$  le gradient de pression.

Le temps  $\tilde{\tau}$  contrôle l'ensemble des effets élastiques pouvant apparaître lors de l'instabilité. En étudiant l'évolution du taux de croissance maximal de l'instabilité en fonction de ce temps de relaxation, ils ont notamment montré (figure 1.23) l'existence d'une divergence du taux de croissance de l'instabilité de Saffman-Taylor. Autrement dit, ils ont pu montrer théoriquement qu'il existe un gradient de pression critique au-delà duquel l'instabilité de Saffman-Taylor d'un fluide viscoélastique diverge.

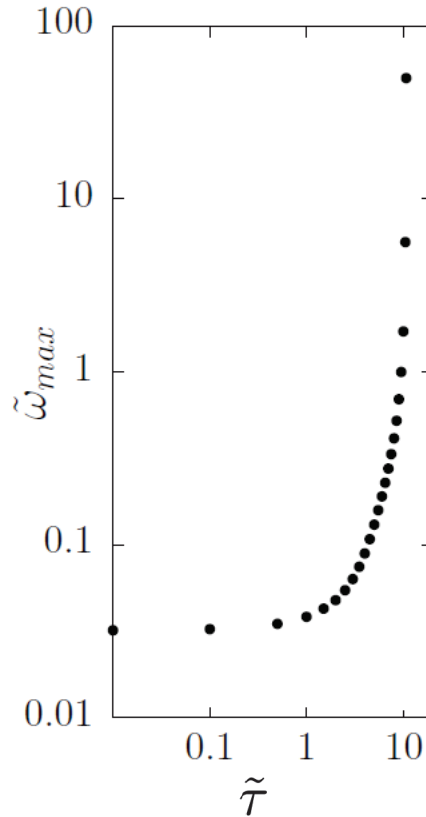


FIGURE 1.23 – Évolution du taux de croissance maximal de l'instabilité de Saffman Taylor pour un fluide de Maxwell en fonction du temps de relaxation réduit  $\tilde{\tau}$ . D'après [75].

Il est intéressant de noter que ce paramètre n'est pas une fonction de la viscosité mais du module de cisaillement. La théorie développée par Mora et al. [74] [75] [76] prévoit une transition entre digitation visqueuse et digitation élastique. Cette transition s'accompagne d'une divergence du taux de croissance de l'instabilité et doit apparaître pour une valeur  $\tilde{\tau}_c = 10.2$ . Expérimentalement, des motifs ressemblant à des fractures apparaissent pour  $\tilde{\tau}_f \approx 10$  ne permettent pas d'observer une divergence du taux de croissance (fig. 1.24). Néanmoins, ces motifs permettent de montrer que les fractures observées sont d'une part une conséquence de l'élasticité du gel et d'autre part qu'elles apparaissent dans le régime linéaire, puisque  $\tilde{\tau}_f < \tilde{\tau}_c$ .

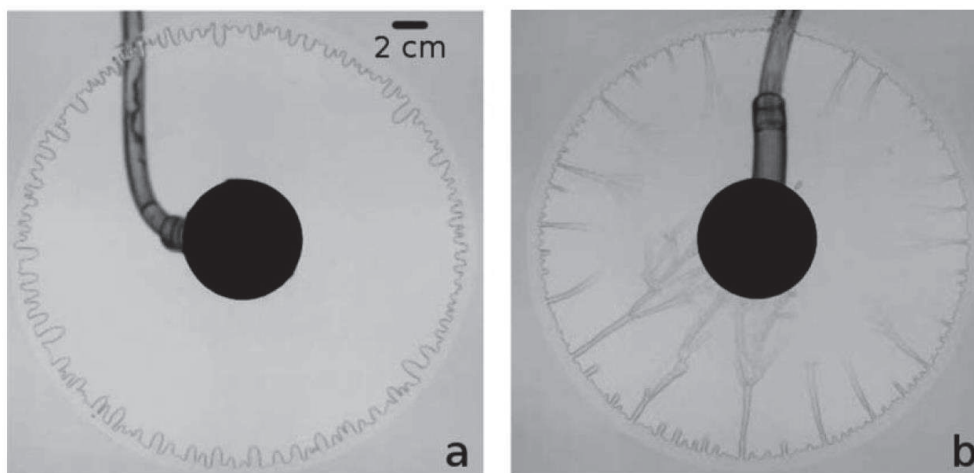


FIGURE 1.24 – Motifs observés pour différentes valeurs du temps de relaxation réduit. (a)  $\tilde{\tau} = 5$ , on observe un motif typique de digitation. (b)  $\tilde{\tau} > 10.2$ , motif de fracture. L'expérience consiste ici en l'aspiration du gel depuis le trou d'injection, c'est pourquoi les motifs apparaissent à l'interface gel/air. D'après [75].

### 1.5.2 Fracture de fluides complexes en cellule de Hele-Shaw

Plusieurs auteurs ont observé des motifs très semblables à des fractures en cellule de Hele-Shaw pour des systèmes très différents : solutions de polymères associatifs [77] [78] [79] [75], suspensions d'argile [80], phases lamellaires [81].

Dans des solutions de polymères associatifs, Zhao et Al. [77] ont montré l'existence d'un seuil en débit d'injection au-delà duquel le motif observé se modifie (figure 1.25). On passe d'un motif typique de l'instabilité de Saffman-Taylor composée de doigts (figure 1.25(a)), c'est-à-dire de structure arrondie, à un motif en aiguille (figure 1.25(b)(c) et (d)). En augmentant le débit d'injection, le motif va se ramifier et devenir de plus en plus complexe (figure 1.25(c) et (d)). La transition entre le régime de digitation visqueuse et le régime de fracturation est large. Pour une certaine gamme de débit d'injection, aussi bien le motif de digitation visqueuse que celui d'une fracturation ont été observés. Néanmoins, dans ce régime, plus le débit est élevé, plus la probabilité d'observer un motif de fracturation est élevée.

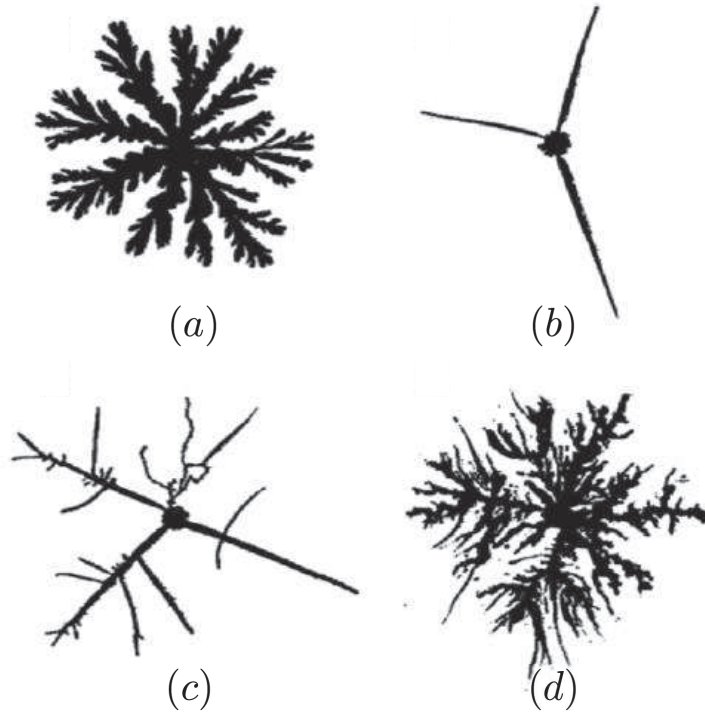


FIGURE 1.25 – Motifs typiques observés lors de l’injection d’eau dans une solution de polymère associatif. Chaque image correspond à un débit d’injection donné. (a)  $Q_v = 1$  mL/min. (b)  $Q_v = 1$  mL/min. (c)  $Q_v = 5$  mL/min. (d)  $Q_v = 20$  mL/min. On remarque que les motifs des figures (a) et (b) sont très différents bien qu’associés au même débit d’injection. D’après [77].

Pour identifier la différence entre le régime de digitation visqueuse et le régime de fracturation, Zhao et al. ont mesuré la dimension fractale des motifs d’instabilité par une méthode de "box-counting" (voir [82]). Cette méthode consiste en la mesure de l’aire envahie par le fluide d’injection dans un cercle de rayon  $R$  centré sur le trou d’injection. La figure 1.26 représente l’évolution de cette aire en fonction de la distance au point d’injection, la dimension fractale du motif est définie par la pente de la partie linéaire de la courbe. D’une valeur de 1.70 dans le cas de la digitation visqueuse, la dimension fractale chute brutalement à une valeur de 1 lorsque l’on dépasse un débit critique. La dimension fractale permet donc la mesure du débit critique au delà duquel on observe des motifs de fracture.

Un nombre de Deborah peut être défini :  $De = (\tau Q_v)/(e^2 L_{cell})$  où  $\tau$  est le temps de relaxation caractéristique du fluide,  $e$  l’épaisseur de la cellule,  $Q_v$  le débit d’injection et  $L_{cell}$  une longueur caractéristique de la cellule. Il a ainsi pu être montré que la transition digitation/fracture se produit pour le même nombre de Deborah, quelle que soit la masse moléculaire du polymère ou la concentration en polymère.



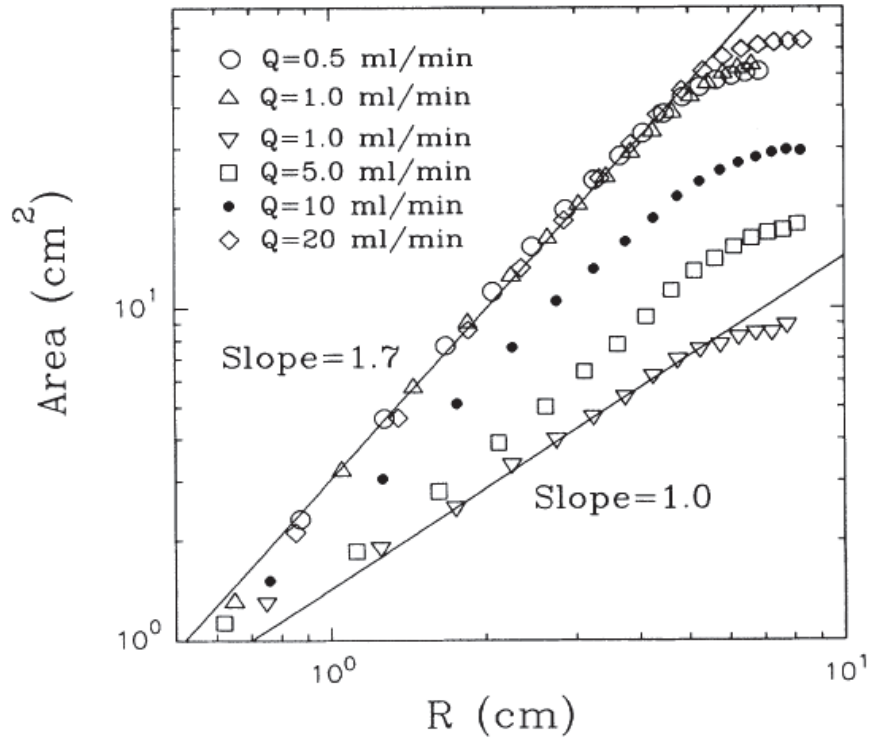


FIGURE 1.26 – Évolution de l'aire de fluide injectée en fonction de la distance au point d'injection. Les lignes représentent l'ajustement linéaire permettant de mesurer la dimension fractale du motif. D'après [77].



FIGURE 1.27 – Transition entre un doigt de Saffman-Taylor (image supérieure) et une fracture (image inférieure). On note la différence de profil entre doigt et fracture. D'après [78].

Dans une géométrie linéaire, Ignes-Mullol et al. [78] ont étudié la transition entre le régime de digitation et le régime de fracture. En changeant le débit d'injection, on change le nombre de Deborah défini plus haut, ce qui permet de passer continument d'un doigt de Saffman-Taylor à une fracture (figure 1.27). En suivant la vitesse de la pointe du motif (doigt ou fracture), on observe que la vitesse d'un doigt fluctue autour d'une vitesse moyenne. Quand une fracture émerge d'un doigt, il s'ensuit une augmentation brutale de la vitesse suivi d'une augmentation linéaire de la vitesse de propagation de la fracture comme le montre la figure 1.28.

Le motif résultant de la transition est fortement dépendant de la masse molaire et de la concentration du polymère. Le motif décrit à la figure 1.27 correspond à ce que l'on observe pour un polymère de faible masse moléculaire. A haute masse moléculaire (figure 1.29), la transition est masquée par l'apparition d'un méandrage de la pointe avec une fréquence caractéristique qui dépend du débit d'injection.

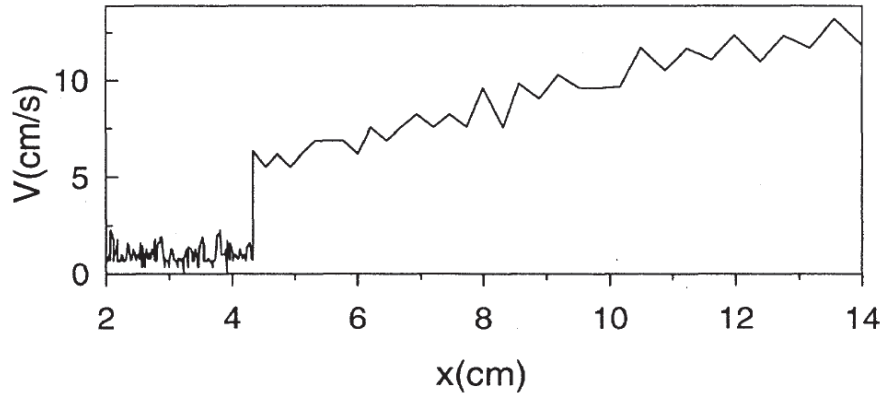


FIGURE 1.28 – Vitesse de pointe du motif en fonction de la position du motif durant la croissance du doigt. À gauche de la courbe, la vitesse fluctue autour d’une valeur moyenne. On note le saut abrupt de vitesse pour  $x \approx 4$  cm correspondant à l’apparition d’une fracture à la pointe du doigt. D’après [78].



FIGURE 1.29 – Transition doigt/fracture dans une solution de polymère associatif de haute masse molaire. L’image du haut représente le doigt avant l’instabilité. L’image centrale représente le motif méandrant se développant à partir du doigt. Dans les dernières phases de l’instabilité, la vitesse de ce motif se met à augmenter de manière importante. D’après [78].

# Chapitre 2

## Systemes et methodes

### 2.1 Systemes experimentaux

Dans cette partie, nous allons presenter les differents types de reseaux transitoires qui ont ete utilises au cours de ce travail. Nous commencerons par presenter les microemulsions connectees et les solutions de micelles geantes enchevêtrees qui, comme mentionné au chapitre 1, representent deux paradigmes experimentaux de reseaux transitoires. Nous decrirons ensuite un systeme hybride entre microemulsions connectees et solutions de micelles geantes enchevêtrees : les micelles geantes pontees par des polymeres telecheliques. Le tableau 2.1 decrit les differents constituants de ces differents systemes.

Composé	formule semi-développée	masse molaire g/mol
Décane	$\text{H}_3\text{C} - (\text{CH}_2)_8 - \text{CH}_3$	142
Octanol	$\text{H}_3\text{C} - (\text{CH}_2)_7 - \text{OH}$	130
CpCl	$\text{H}_3\text{C} - (\text{CH}_2)_{15} - \text{C}_5\text{H}_5\text{N}^+\text{Cl}^-$	339.5
Salicylate de sodium	$\text{HO} - \text{C}_6\text{H}_4 - \text{COO}^-, \text{Na}^+$	160.11
POE-2-C18	$\text{CH}_3 - (\text{CH}_2)_{17} - \text{NH} - \text{CO} - (\text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2)_{227} -$ $\text{O} - \text{CO} - \text{NH} - (\text{CH}_2)_{17} - \text{CH}_3$	10 400
POE-2-C23	$\text{CH}_3 - (\text{CH}_2)_{22} - \text{NH} - \text{CO} - (\text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2)_{227} -$ $\text{O} - \text{CO} - \text{NH} - (\text{CH}_2)_{22} - \text{CH}_3$	10 540

TABLE 2.1 – Formule semi-développée et masse molaire des composés utilisés pour préparer les différents systèmes.

#### 2.1.1 Les microemulsions connectées

Les microemulsions connectées sont constituées de micelles de tensioactifs en solution dans l'eau, gonflées par de l'huile et pontées par des polymères téléchéliques [15]. Elles forment, au-delà d'un seuil de percolation, un réseau transitoire. Nous avons utilisé le chlorure de cetylpyridinium (CpCl) comme tensioactif et l'octanol en guise de cotensioactif. Les micelles sont gonflées par du décane et dispersées dans une eau salée à 0.2 M de chlorure de sodium pour écranter les interactions électrostatiques dues au caractère ionique du CpCl. Quelques caractéristiques de ces composés se trouvent dans le tableau 2.1. La forme et la taille des gouttelettes sont contrôlées par deux paramètres physicochimiques que nous avons fixés :

- Le rapport massique cotensioactif sur tensioactif  $\Omega = 0.25$
- Le rapport massique entre l'huile et le mélange tensioactif+cotensioactif  $\Gamma_s = 0.56$

Cela nous permet d'avoir des gouttelettes sphériques quasi-saturées en huile et de rayon bien défini ( $R_{gouttes} = 62\text{\AA}$ ), que l'on peut mesurer par diffusion de rayonnement [83].

On peut également contrôler la concentration en gouttelettes  $\Phi$  définie par  $\Phi = \frac{m_{ht} + m_{huile}}{m_{totale}}$ .  $m_{ht}$  est la masse de la partie hydrophobe des tensio-actifs,  $m_{huile}$  est la masse de décane servant à faire gonfler les micelles, et  $m_{totale}$  est la masse totale de la microémulsion. Ce paramètre  $\Phi$  est directement relié à la distance moyenne entre gouttes.

Le polymère téléchélique est constitué d'un squelette hydrophile de Poly oxy-éthylène (PEO) de masse molaire 10 000 g/mol aux extrémités duquel ont été greffés des groupes hydrophobes (stickers). Ces stickers sont constitués d'une chaîne aliphatique dont on peut choisir le nombre de groupes méthyl. Le tableau 2.1 présente les différents polymères utilisés. Pour réaliser ces microémulsions, nous avons utilisé le polymère POE-2-C18 possédant des stickers à 18 carbones. On peut estimer le rayon de giration de la partie polymère du PEO à  $R_g = 37\text{\AA}$ . La connectivité du réseau  $N_s$  est définie comme étant le nombre moyen de stickers par gouttelettes de microémulsion :

$$N_s = \frac{2 \times \text{Nombre de polymeres}}{\text{Nombre de gouttelettes de micromulsion}}$$

Nous avons travaillé à une concentration  $\Phi = 10\%$  et à une connectivité de  $N_s = 10$  de façon à être loin du seuil de percolation (ce seuil a été déterminé précédemment [84] et vaut  $N_s = 2.79$ ). Avec ces paramètres, la distance centre à centre entre les gouttelettes est de  $200\text{\AA}$  [85].

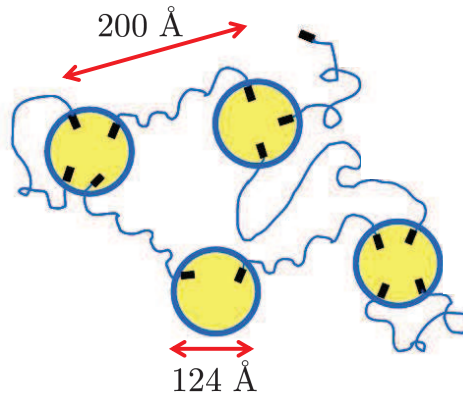


FIGURE 2.1 – Représentation schématique d'une microémulsion connectée.

Tel que précisé au chapitre 1, ce système se comporte comme un fluide de Maxwell jusqu'à des fréquences de l'ordre de 100 rad/s. La figure 2.3 montre l'évolution des modules de stockage et de perte en fonction de la fréquence. Pour un fluide de Maxwell, on peut modéliser ces modules par les relations suivantes :

$$G'(\omega) = G_0 \frac{(\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (2.1)$$

$$G''(\omega) = G_0 \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (2.2)$$

où  $G_0$  est le module de cisaillement et  $\tau$  est le temps de relaxation. En ajustant les équations 2.1 et 2.2 sur les données de la figure 2.3, nous obtenons :

$$G_0 = (1650 \pm 50) \text{ Pa} \quad \tau = (0.70 \pm 0.03) \text{ s}$$

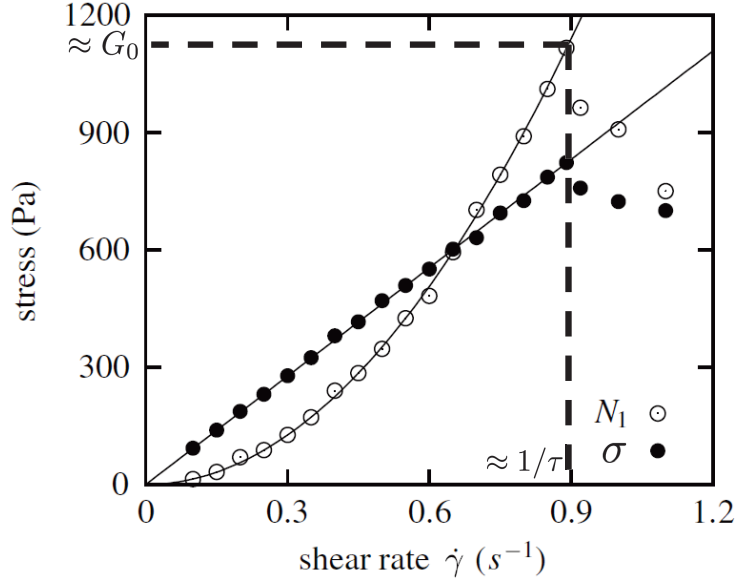


FIGURE 2.2 – Courbe d’écoulement d’une solution de microémulsion connectée de paramètres  $\Phi = 10\%$  et  $N_s = 9$ . Contrainte de cisaillement  $\sigma$  ( $\bullet$ ), première différence de contraintes normales  $N_1$  ( $\circ$ ) en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . D’après [11].

La figure 2.2 présente une courbe d’écoulement typique d’une solution de microémulsion connectée. On remarque que l’écoulement s’effectue de manière linéaire jusqu’à une valeur critique  $\dot{\gamma}_c = 1/\tau$ . Au-delà de cette valeur, le gel se fracture dans l’entrefer du rhéomètre (voir la référence [11]) ce qui se traduit par un effondrement de la contrainte de cisaillement et de la première différence de contraintes normales  $N_1$ .

Les groupes hydrophobes vont fortement influencer les propriétés rhéologiques de la microémulsion connectée. À concentration fixée, le temps de relaxation du système dépend de la longueur des stickers *i.e.* du nombre de groupes méthyle de la chaîne aliphatique. La théorie des réseaux transitoires [86] permet de faire le lien entre le temps de relaxation macroscopique et les stickers utilisés :  $\tau = \tau_0 e^{E_a/k_b T}$  où  $E_a$  représente une énergie d’activation mise en jeu lorsqu’un sticker quitte une gouttelette. Cette énergie d’activation est proportionnelle au nombre de groupes méthyle des stickers. Le module élastique dépend de la connectivité, c’est-à-dire du nombre de stickers qui vont venir se fixer dans le cœur hydrophobe des gouttelettes (figure 2.1). La théorie des réseaux transitoires [86] relie le module à la densité de liens actifs  $\nu_a$  *via* la relation :  $G_0 = \nu_a k_b T$  où  $\nu_a$  représente les liens qui participent à la transmission des contraintes élastique.

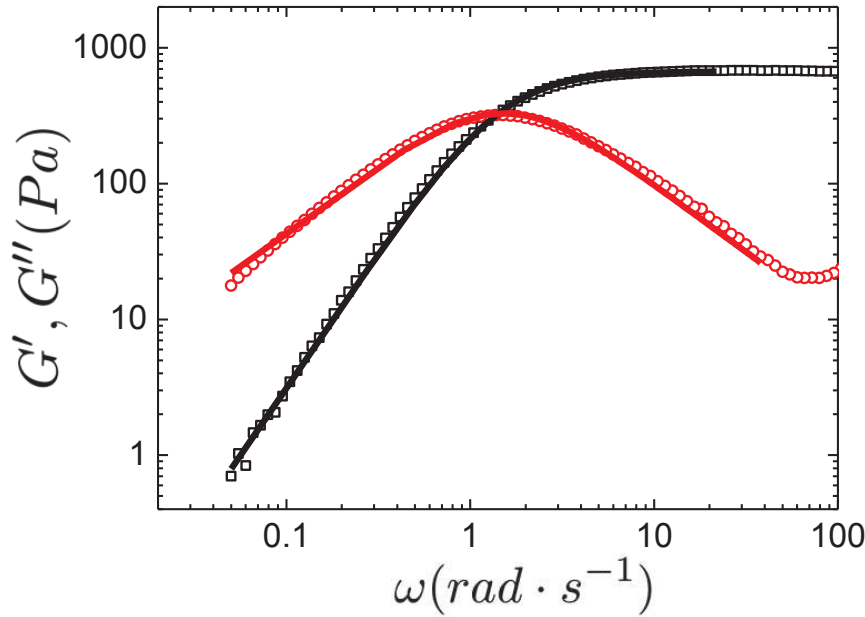


FIGURE 2.3 – Évolution des modules de stockage  $G'$  ( $\square$ ) et de perte  $G''$  ( $\circ$ ) en fonction de la fréquence pour une microémulsion connectée de paramètres  $\Phi = 10\%$  et  $N_s = 10$ . Les lignes représentent l'ajustement des données par les relations 2.1 et 2.2.

### 2.1.2 Les micelles géantes enchevêtrées

Les micelles géantes sont des agrégats allongés et semi-flexibles résultant de l'auto-assemblage de tensioactifs en solution. Nous avons choisi de travailler avec des micelles formées d'un tensioactif cationique, le chlorure de cetylpyridium (CpCl), et de salicylate de sodium (NaSal) (voir table 2.1) dispersés dans une solution d'eau salée à 0.5 M de chlorure de sodium pour écranter les interactions électrostatiques dues au caractère ionique du CpCl et du NaSal. Les propriétés viscoélastiques de ce système ont été étudiées par Rehage et Hoffman au début des années 1990 [42] [87]. Elles sont contrôlées par deux paramètres physicochimiques :

- la fraction massique en tensioactif  $\varphi = \frac{m_t + m_{ct}}{m_{totale}}$ ,
- le rapport molaire cotensioactif sur tensioactif  $R_{surf} = \frac{n_{ct}}{n_t}$ ,

où  $m_t$  et  $m_{ct}$  représente respectivement les masses de tensioactif et de cotensioactif, et  $n_t$  et  $n_{ct}$  sont les quantités de matière de tensioactif et de cotensioactif. Nous allons nous placer dans le cas de solutions semi-diluées de micelles. La fraction massique en tensioactif se situera autour de 10%. Pour la plupart des expériences, nous avons choisi  $\varphi = 9\%$ . Pour certaines expériences du chapitre 5 nous changerons la concentration en chlorure de sodium entre 0.1 M et 0.5 M.

En dépit d'une microstructure très différente, les solutions de micelles géantes enchevêtrées possèdent le même comportement viscoélastique linéaire que les microémulsions connectées, c'est-à-dire qu'elles peuvent être décrites par le modèle du fluide de Maxwell jusqu'à des fréquences de l'ordre de 100 rad/s. La figure 2.4 présente l'évolution des modules de stockage et de perte en fonction de la fréquence dans le cas d'une solution de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ .

Les données ont été ajustées par les équations 2.1 et 2.2, ce qui donne un module élastique de  $G_0 = 160$  Pa et un temps de relaxation de  $\tau = 0.32$  s.

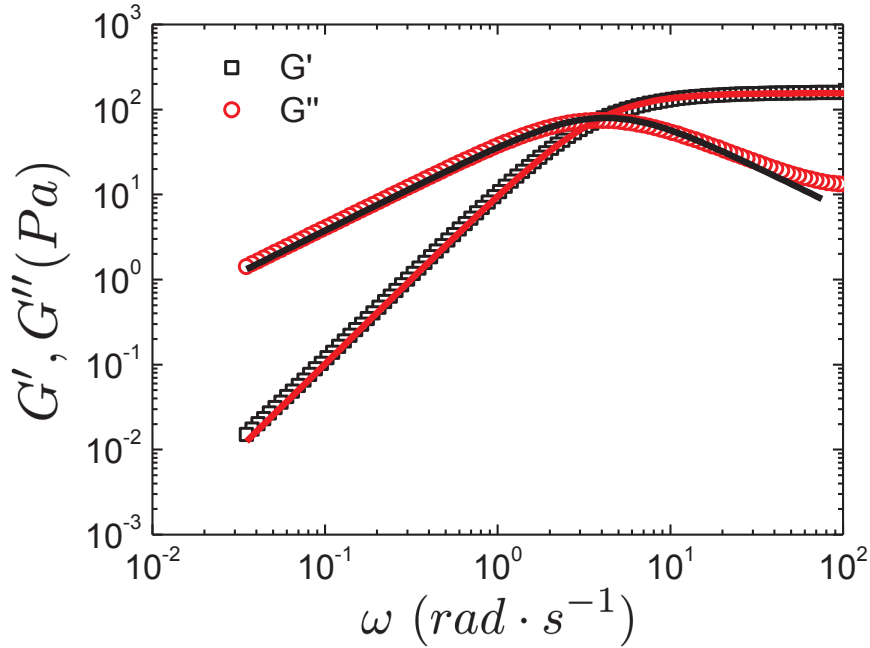


FIGURE 2.4 – Évolution des modules de stockage  $G'$  ( $\square$ ) et de perte  $G''$  ( $\circ$ ) en fonction de la fréquence pour une solution de micelles géantes de paramètres  $\varphi = 9\%$  et  $R_{surf} = 0.5$ . Les lignes représentent l'ajustement des données par les relations 2.1 et 2.2

Les propriétés rhéologiques des micelles géantes enchevêtrées sont néanmoins différentes des microémulsions connectées de par leur comportement non linéaire beaucoup plus complexe. Tant que l'on se situe à un taux de cisaillement inférieur à un taux de cisaillement critique, le fluide se comporte linéairement, c'est-à-dire que la contrainte de cisaillement  $\sigma$  va varier linéairement avec le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . Au-delà d'un seuil de cisaillement critique indiqué par le trait en pointillé sur la figure 2.5, l'écoulement de la solution devient inhomogène et des bandes de cisaillement apparaissent. Le plateau dans l'évolution de la contrainte en fonction du taux de cisaillement est une signature de ces bandes de cisaillement. Le taux de cisaillement critique est proche de l'inverse du temps de relaxation linéaire.

On renvoie vers les articles de revue [43] [2] pour une description plus complète de cette instabilité.

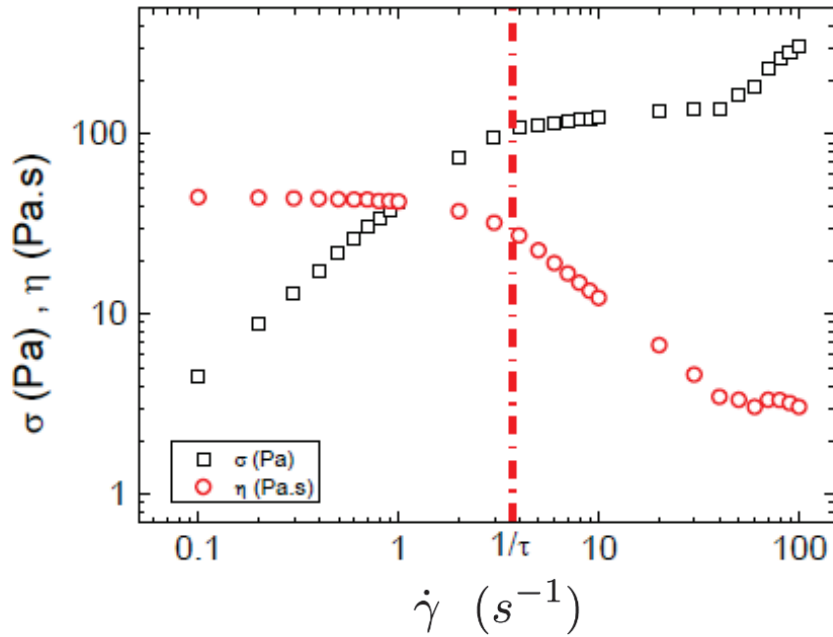


FIGURE 2.5 – Courbe d'écoulement : contrainte  $\sigma$  ( $\square$ ) et viscosité  $\eta$  ( $\circ$ ) en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de micelles géantes de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$ . La ligne verticale représente le taux de cisaillement critique  $1/\tau$

### 2.1.3 Les micelles pontées à morphologie variable.

Nous avons présenté ci-dessus deux "familles" de réseaux transitoires qui ont des comportements rhéologiques non linéaires différents. Afin de mieux comprendre leurs différences, ainsi que de caractériser le comportement intermédiaire, un système original a été récemment développé au laboratoire [6] [12] [13].

Ce système de micelles pontées a pour but de pouvoir exhiber aussi bien les propriétés de systèmes que nous qualifierons de "fragiles" (§1.1), comme les microémulsions connectées, que celle de systèmes "ductiles" (§1.1), comme les micelles géantes enchevêtrées.

Il est conçu à partir d'une solution de micelles de morphologie contrôlable (voir section 2.1.2) à laquelle nous avons rajouté des polymères téléchéliques avec des stickers composés de 23 groupes carbonés (voir table 2.1). Les paramètres physicochimiques sont identiques à ceux décrits dans la section concernant des micelles géantes 2.1.2. A ces paramètres, il faut maintenant ajouter la fraction massique entre polymères et tensioactifs+cotensioactifs  $\beta = \frac{m_{pol}}{m_t + m_{ct}}$ , où  $m_{pol}$ ,  $m_t$ , et  $m_{ct}$  sont respectivement la masse de polymère, la masse de tensioactif et de cotensioactif.



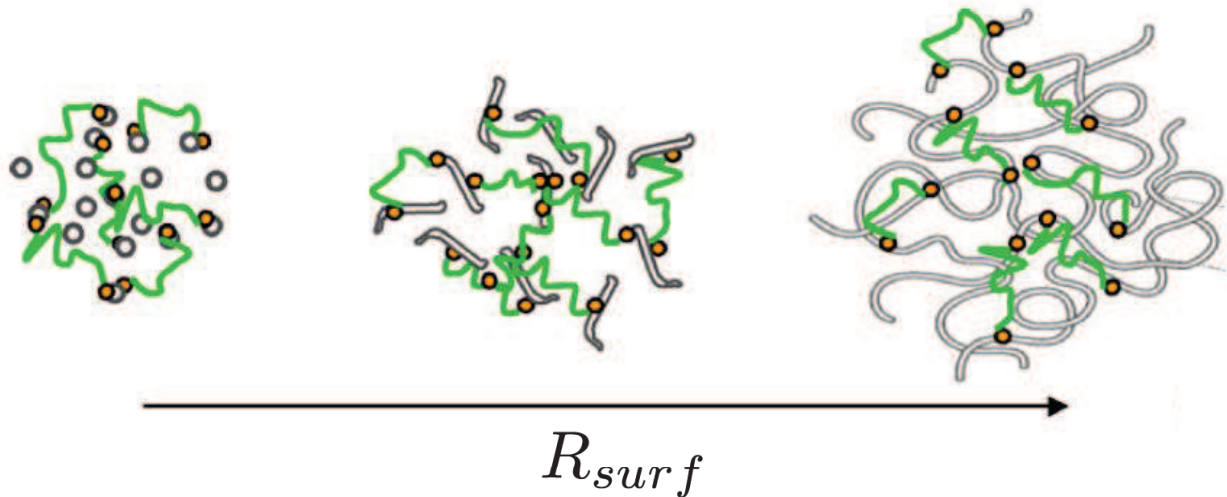


FIGURE 2.6 – Évolution de la structure de micelles pontées en fonction du paramètre  $R_{surf}$

### Structure de micelles nues.

Pour  $\varphi$  fixé, nous avons fait varier le paramètre  $R_{surf}$  entre 0 et 0.5. Lorsque  $R_{surf}$  se situe en dessous d'une valeur seuil (à  $\varphi = 9\%$  ce seuil est de  $R_{surf} \sim 0.2$ ), la viscosité est proche du solvant et le fluide se comporte comme un fluide newtonien. Il a été montré que les micelles sont alors sphériques [43]. En faisant croître  $R_{surf}$ , la structure des micelles change progressivement pour passer d'une forme sphérique à une forme cylindrique qui, pour de grandes valeurs de  $R_{surf}$  et de  $\varphi$ , vont s'enchevêtrer pour former un réseau transitoire.

Nous pouvons suivre l'évolution des propriétés viscoélastiques linéaires avec le paramètre  $R_{surf}$  à une fraction massique en surfactant fixé à  $\varphi = 9\%$  pour une température  $T = 27^\circ\text{C}$ . Tant que l'on se situe à des valeurs de  $R_{surf}$  suffisamment petites, la viscosité dynamique (figure 2.7) est du même ordre de grandeur que la viscosité du solvant. Cette viscosité augmente de plusieurs ordres de grandeurs quand  $R_{surf} \geq 0.2$ . Cette augmentation est la signature de l'apparition d'un régime où les micelles sont enchevêtrées.

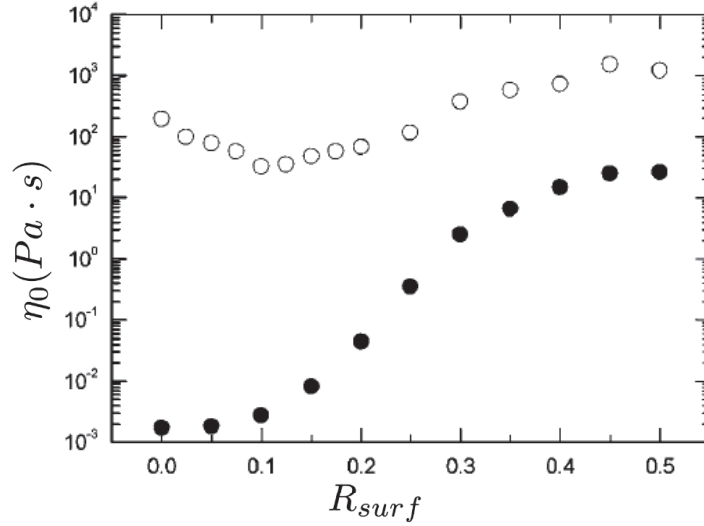


FIGURE 2.7 – Évolution de la viscosité dynamique  $\eta_0 = G_0 \cdot \tau$  en fonction de  $R_{surf}$ . Les points noirs correspondent à une solution de micelles géantes de paramètres  $\varphi = 9\%$ . Les points blancs correspondent à une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$  et  $\beta = 55\%$ . D'après [12]

### Structure des micelles pontées par du polymère

Pour notre étude, seul le rapport  $R_{surf}$  varie (entre 0 et 0.5). Les autres paramètres sont fixés à  $\varphi = 9\%$  et  $\beta = 55\%$ . Le comportement de ce fluide peut être décrit par le modèle du fluide de Maxwell quand  $R_{surf} < 0.19$  (figure 2.8(a)), et par un fluide de Maxwell généralisé à deux modes quand  $R_{surf} > 0.19$  [12] [10] (figure 2.9(a)) :

- un mode lent, associé au réseau de micelles géantes,
- et un mode rapide, associé au réseau de polymères connectés.

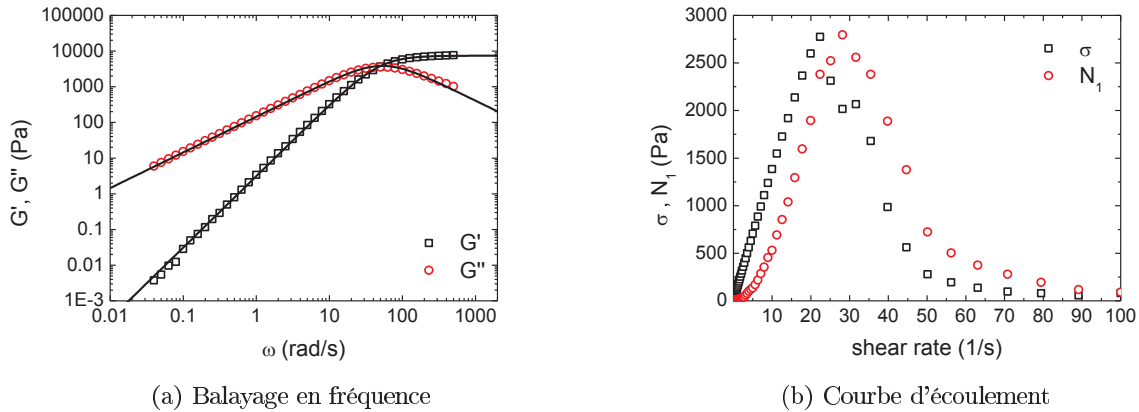


FIGURE 2.8 – Propriétés rhéologiques d'une solution de micelles géantes pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $\beta = 55\%$ , et  $R_{surf} = 0.1$ . Les lignes représentent l'ajustement des données par les relations 2.1 et 2.2

Dans le régime correspondant à  $R_{surf} > 0.19$ , le fluide est donc caractérisé par deux modules élastiques  $G_0^{fast}$  et  $G_0^{slow}$ , ainsi que par deux temps de relaxation  $\tau^{fast}$  et  $\tau^{slow}$  tels que définis dans les équations 2.3 et 2.4 :

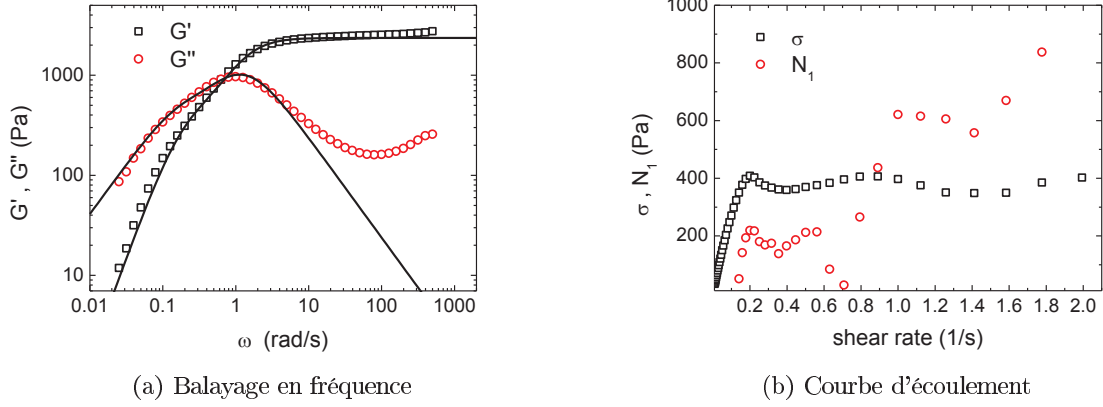


FIGURE 2.9 – Propriétés rhéologiques d'une solution de micelles géantes pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $\beta = 55\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ . Les lignes représentent l'ajustement des données par les relations 2.3 et 2.4

$$G'(\omega) = G_0^{fast} \frac{(\omega\tau^{fast})^2}{1 + (\omega\tau^{fast})^2} + G_0^{slow} \frac{(\omega\tau^{slow})^2}{1 + (\omega\tau^{slow})^2} \quad (2.3)$$

$$G''(\omega) = G_0^{fast} \frac{\omega\tau^{fast}}{1 + (\omega\tau^{fast})^2} + G_0^{slow} \frac{\omega\tau^{slow}}{1 + (\omega\tau^{slow})^2} \quad (2.4)$$

La figure 2.10 présente les propriétés rhéologiques linéaires de micelles pontées qui ont été mesurées dans la référence [12].

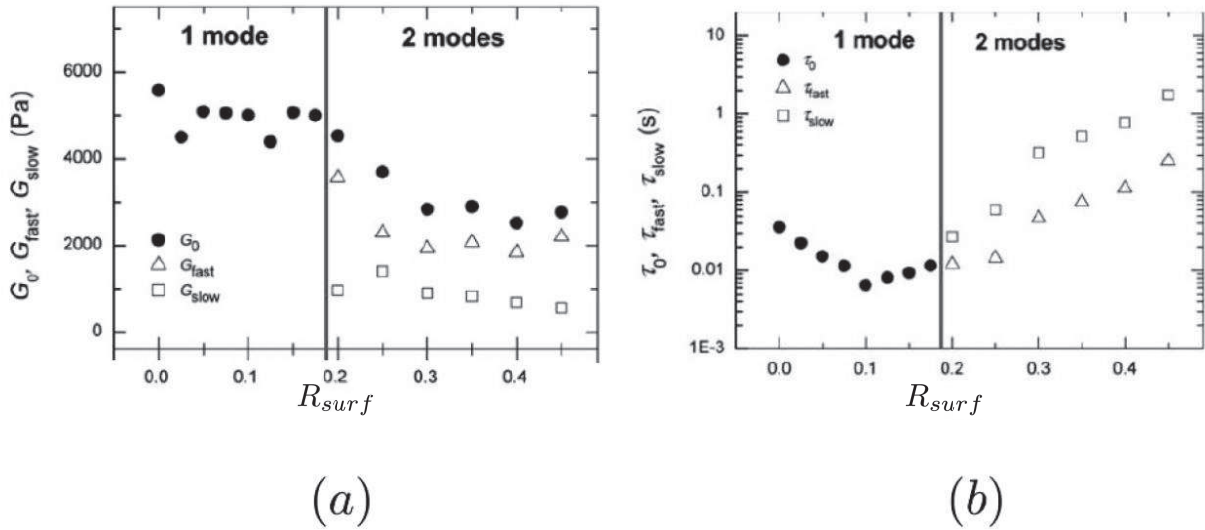


FIGURE 2.10 – Propriétés rhéologiques linéaires de micelles pontées en fonction de  $R_{surf}$  pour  $\varphi = 9\%$  et  $\beta = 55\%$ . (a) Modules élastiques. (b) Temps de relaxation. D'après [12]

En fonction de  $R_{surf}$ , on observe des comportements très différents. Les figures 2.8(b) et 2.9(b) présentent la courbe d'écoulement ainsi que l'évolution de la première différence de contraintes normales  $N_1$  en fonction du taux de cisaillement.

Pour  $R_{surf} < 0.19$ , la courbe d'écoulement  $\sigma = f(\dot{\gamma})$  (figure 2.8(b)) se caractérise par un comportement quasi linéaire jusqu'à un cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c = \frac{1}{\tau}$  au-delà duquel on observe une chute brutale de la contrainte de cisaillement et de  $N_1$ , similaire à ce que l'on mesure pour les microémulsions connectées (figure 2.2).

Pour des valeurs  $R_{surf} > 0.19$ , le comportement est très différent. Nous n'observons plus d'effondrement de  $N_1$ . Après le regime où la contrainte de cisaillement  $\sigma$  varie linéairement avec  $\dot{\gamma}$ , nous observons l'apparition d'un plateau de contrainte. Nous observons également l'apparition d'un court plateau suivi d'une forte augmentation de la première différence de contraintes normales  $N_1$ .

## 2.2 Montage expérimental

Dans cette partie nous allons présenter le dispositif expérimental utilisé pour observer la digitation visqueuse et la fracture. Nous présenterons le protocole qui nous a permis d'obtenir des mesures reproductibles. Nous nous attarderons sur quelques difficultés qui sont apparues au cours de l'étude. Pour finir, nous présenterons les techniques développées afin d'extraire des informations quantitatives à partir des données expérimentales.

### 2.2.1 Description du montage

Au sein du groupe, dans les études précédant cette thèse, la géométrie de gouttes pendantes a été utilisée afin de caractériser la nucléation et la propagation de fractures dans des réseaux transitoires [14]. Si cette géométrie est bien adaptée pour observer la nucléation d'une fracture, elle ne permet pas l'étude de la propagation de fissure d'une façon optimale (la propagation étant limitée par la taille de la goutte).

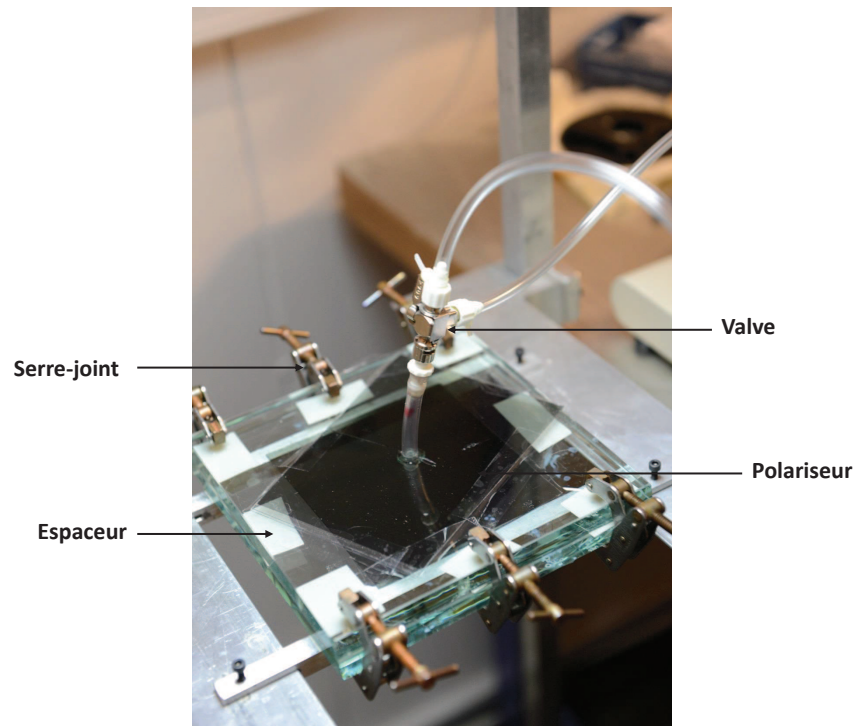
Pour étudier la propagation, plusieurs groupes ont utilisé des cellules de Hele-Shaw [76] [80] [78] [77]. Ce type de géométrie présente plusieurs avantages :

- il s'agit d'une géométrie quasi-bidimensionnelle,
- on peut observer des fractures sur de grandes distances, de l'ordre du cm,
- on peut contrôler (par l'imposition d'une pression ou d'un débit d'injection) l'apparition d'une fracture,
- bien que l'on ne contrôle pas directement la vitesse, on peut explorer une large gamme de vitesses de fracturation.

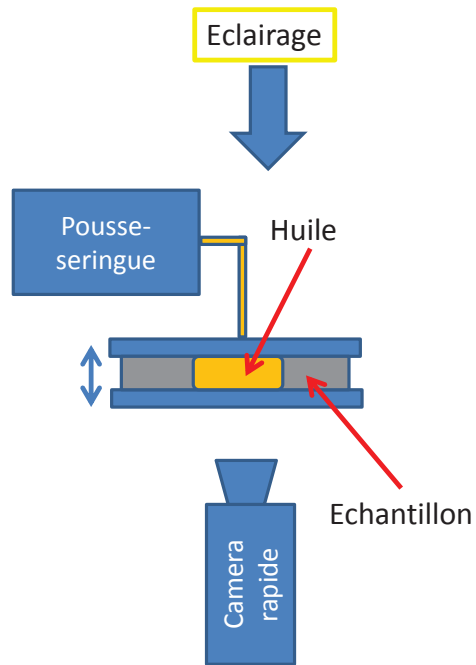
Nous avons choisi de travailler avec une cellule de Hele-Shaw radiale. Cette cellule est formée de deux plaques de verre séparées par des espaceurs. La plaque supérieure est percée d'un trou de 6mm de diamètre pour fixer le dispositif d'injection. Nous avons utilisé deux types de plaques de verre. Une première série de cellules a été réalisée avec des plaques de dimensions 30cm  $\times$  30cm et d'épaisseur 0.5cm ; la seconde série a été réalisée avec des plaques de dimensions 15cm  $\times$  15cm et d'épaisseur 1cm. Nous avons utilisé des espaceurs en Mylar de 500 $\mu$ m entre les plaques. Les plaques sont fixées ensemble par des serre-joints (figure 2.11(a)).

Le dispositif d'injection est composé de tuyaux en PVC souples et d'une valve à deux entrées. Des embouts standards permettent la connexion des tuyaux sur les seringues et la valve. Les seringues contenant l'huile et l'échantillon sont chacune connectées à une des entrées. La sortie est connectée à la cellule via un tuyau en plastique souple fixé au trou de la plaque supérieure puis collée avec de la colle optique (NOA 61). En conditions de remplissage de cellule, la seringue contenant l'échantillon est fixée sur un pousse seringue. En condition de travail, ce sera celle contenant l'huile. La cellule est placée sur un châssis sur lequel nous avons fixé un panneau lumineux pour éclairer la cellule, et une caméra rapide équipée d'un objectif macro (figure 2.11(b)). Nos expériences consistent en l'injection d'une huile de colza commerciale, faiblement visqueuse, dans un gel transtoire. L'huile sera éventuellement colorée (Par du colorant "rouge soudan IV") pour améliorer le contraste. Les expériences sont réalisées à la température de la salle, contrôlée par un climatiseur, autour de 25 °C. Dans ces conditions, l'huile de colza présente une viscosité de  $\eta_{huile} = 60 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  que nous avons déterminée par mesures rhéologiques.

Pour les expériences des chapitres 3 et 5, nous avons utilisé une caméra rapide phantom V7, pour celles des chapitres 4 et 5, une caméra photron fastcam. Ces caméras peuvent acquérir des



(a)



(b)

FIGURE 2.11 – (a) Cellule de Hele-Shaw radiale. (b) Schéma du dispositif expérimental.

images sur des larges gammes de fréquences d'acquisition. Pour des expériences de fracture, on se placera la plupart du temps à des fréquences de 500 images/seconde. Dans le cas d'expériences de digitation visqueuse, on travaillera à la fréquence la plus basse de la caméra (10 images/seconde pour la caméra phantom, 60 images/seconde pour la caméra photron). Le châssis permet de régler la distance caméra-cellule, cela va fixer la résolution spatiale du montage : 1 pixel  $\approx$  0.086 mm. Le châssis permet d'assurer l'horizontalité de la cellule. Pour les expériences des chapitres 4 et 5 nous avons équipé la cellule de polariseurs croisés (figure 2.11(a)).

## 2.2.2 Protocole expérimental

### Préparation de la cellule

Les plaques sont d'abord rincées à l'eau claire afin d'éliminer toute trace d'huile et d'échantillon. Elles sont ensuite lavées avec de l'eau savonneuse puis rincées successivement à l'acétone, à l'eau distillée puis à l'éthanol. Elles sont séchées par air comprimé. Éventuellement, on pourra les placer dans un bain d'acide sulfochromique pendant une heure avant de les rincer abondamment à l'eau distillée. Les tuyaux, la valve, et les connectiques sont lavés séparément en suivant le même protocole que celui utilisé pour laver les plaques de verre.

La seringue contenant le fluide viscoélastique est remplie puis stockée verticalement, dans une armoire thermostatée à 30 °C environ deux jours avant l'expérience pour "débuller" l'échantillon. Pour préparer une cellule, on commence par coller sous U.V. un tuyau (sans embout) sur le trou de la plaque supérieure, avant de fixer la cellule.

On fixe et on remplit les tuyaux reliés aux seringues contenant respectivement l'huile et le gel. On les connecte ensuite sur la valve. On injecte l'échantillon à un débit de 0.1mL/min jusqu'à formation d'une goutte d'échantillon à la sortie de la valve puis on injecte ensuite l'huile de la même façon. Cette étape a pour but de chasser l'air présent dans la valve de manière à ce qu'il ne reste plus que de l'échantillon et de l'huile dans la valve. Pour finir, on fait couler à nouveau l'échantillon à un débit de 0.1mL/min. La sortie de la valve est ensuite nettoyée de manière à ce qu'il ne reste plus que de l'échantillon. Pour finir un embout est fixé sur la sortie.

On dépose une couche de gel de quelques millimètres d'épaisseur sur le tuyau connecté à la cellule avant de fixer le dispositif d'injection sur ce tuyau. Cette opération a pour but de limiter la présence d'air dans le montage.

### Remplissage et préparation d'une expérience

On commence par remplir à faible débit (typiquement 0.1mL/min) la cellule d'échantillon jusqu'à obtenir une tache circulaire d'environ 35 mm de rayon. On bascule ensuite la valve en mode injection d'huile pour injecter à très faible débit (généralement entre 0.01 et 0.1mL/min). Afin que l'ensemble des expériences soit réalisés dans des conditions identiques, nous stoppons l'injection d'huile quand l'interface huile/échantillon est à 1 cm environ de la surface de la plaque supérieure et nous imposons un temps de repos de 30 minutes avant le début d'une expérience.

### Vérification du contrôle du débit.

Afin de vérifier que le débit dans la cellule correspond bien à celui imposé par le pousse-seringue, on a réalisé des expériences tests consistant en l'injection d'une huile et d'un fluide viscoélastique à débit fixé. Nous commençons par former une tache dans la cellule (voir figure 2.12). On a réalisé cette expérience de contrôle pour un fluide newtonien (l'huile de colza), et pour un fluide viscoélastique (une solution de micelles géantes enchevêtrées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$ ).

En mesurant l'évolution du volume  $V$  de la tache au cours du temps, on a accès au débit. On mesure  $\Delta V = V(t + \delta t) - V(t)$ .  $\Delta V$  correspond au volume injecté dans la cellule pendant l'intervalle de temps  $\delta t$ . Le débit est donné par  $Q_v = \frac{\Delta V}{\delta t}$ .

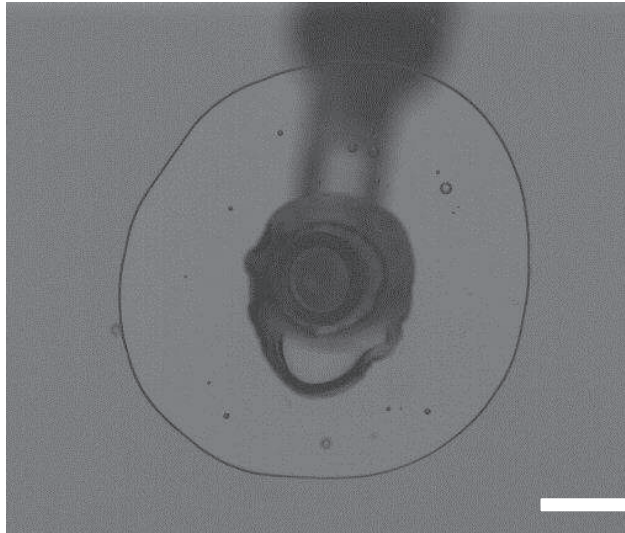


FIGURE 2.12 – Tache d’huile de colza avant imposition d’un débit-test. Barre = 6mm

### Cas d’un fluide newtonien

A partir d’une tache de 30 mm de diamètre (volume initial de la tache : 0.28 mL), on impose, à  $t = 0$  s, un débit de 0.1 mL/min. La figure 2.13(a) montre l’évolution du volume d’huile en fonction du temps. Dès le début de l’injection, le volume d’huile dans la cellule augmente linéairement. Cette courbe permet de calculer le débit instantané dans la cellule (figure 2.13(b)). On atteint de manière quasi-instantanée un plateau  $Q_v = 0.11 \pm 0.02$  mL/min que l’on compare au débit de 0.1 mL/min imposé par le pousse-seringue. Le débit mesuré dans la cellule correspond parfaitement au débit de consigne du pousse-seringue.

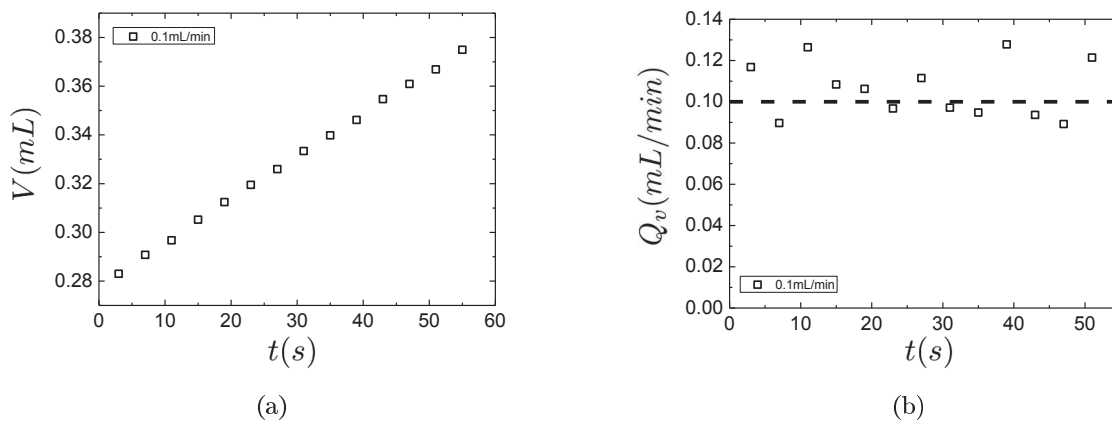


FIGURE 2.13 – Évolution du volume d’huile de colza et du débit dans la cellule en fonction du temps.

### Cas d’un fluide viscoélastique

Dans cette expérience test, nous avons imposé un débit de 0.6mL/min a  $t = 0$  s, et nous avons réaliser les mêmes analyses que dans le cas de l’huile de colza.

Contrairement au cas de l’huile de colza, on constate que l’on n’atteint pas de manière quasi-instantanée le débit de consigne, il faut attendre environ 5 s avant d’obtenir un débit constant de  $Q_v = 0.52 \pm 0.17$  mL/min, ce qui est comparable à la valeur de consigne :  $Q_v = 0.6$  mL/min. Il convient de noter ici que même pour un faible débit, les effets rhéofluidifiants sont importants dans

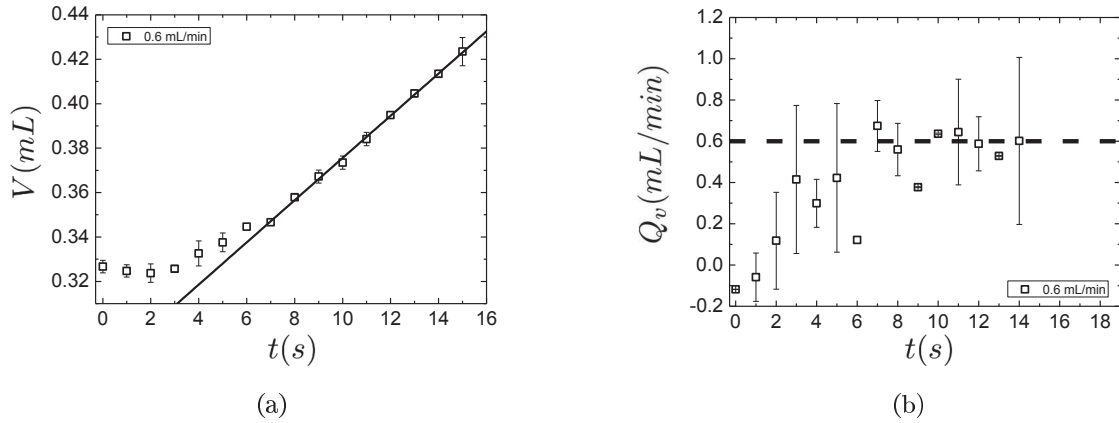


FIGURE 2.14 – Évolution du volume de solution de micelles géantes et du débit dans la cellule en fonction du temps. (a) la ligne représente un ajustement linéaire des données expérimentales. (b) la ligne en pointillés représente le débit de consigne.

la cellule. En effet, on a réalisé des expériences avec une huile newtonienne de silicone possédant une viscosité dynamique du même ordre de grandeur que celle de la solution de micelles géantes enchevêtrées (soit  $\eta_0 = G_0\tau \simeq 50 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ). Pour cette huile de silicone, les débits mesurés sont toujours très inférieurs au débit de consigne. Par exemple, en imposant un débit de 2 mL/min, le débit mesuré dans la cellule n'est que de  $(0.6 \pm 0.38) \text{ mL/min}$ . L'huile de silicone étant un fluide newtonien, cela montre l'importance de la rhéofluidification pour pouvoir injecter des micelles à des débits variés.

### 2.2.3 Difficultés rencontrées

#### Contrôle du gap

Lors des expériences réalisées avec la première série de plaques (de dimensions  $30 \times 30 \times 0.5 \text{ cm}$ ), nous avons observé une rétractation de la tache initiale de gel avant l'apparition des fractures. Sur la figure 2.15(b), on observe une zone plus claire qui correspond à la trace laissée par la rétractation de la tache. Par exemple, à un débit de  $Q_v = 40 \text{ mL/min}$ , on a mesuré l'évolution du périmètre de la tache de gel en fonction du temps. Cela a permis d'observer une rétractation de la tache de l'ordre de  $0.75 \pm 0.25 \text{ mm}$ , soit environ 2.5% des dimensions initiales de la tache au début de l'injection. Cette diminution de la taille de la tache correspond à une augmentation d'épaisseur de la cellule d'environ  $(15 \pm 5) \mu\text{m}$ . Dans le même temps, nous avons pu mesurer, sur les images, le niveau de gris moyen de la tache. On a pu ainsi observer une diminution d'environ 3% du niveau de gris moyen au début de l'injection, ce qui tend à confirmer l'augmentation de l'épaisseur de la cellule.

Quand le gel est soumis à un cisaillement, des contraintes normales au cisaillement vont s'appliquer. Dans notre géométrie, l'écoulement du gel peut être approché par un profil de Poiseuille (parabolique). Le cisaillement est maximal proche des plaques de verre. Les contraintes normales vont ainsi exercer une force normale aux plaques de verre, tendant à les écarter l'une de l'autre, augmentant ainsi le gap de la cellule. Les plaques sont fixées rigidement à l'aide de serre-joints positionnés sur les bords de plaque (on peut les voir à la figure 2.11(a)), cette force va donc provoquer une flexion des plaques. Quand une fracture nucléée, on s'attend à voir diminuer les contraintes normales, donc les forces normales qui s'appliquent sur les plaques. Cela peut se traduire par un arrêt de la rétractation et par une reprise de l'expansion de la tache de gel. La figure 2.16 montre l'évolution du rayon de la tache de gel. On commence à injecter à  $t = 0 \text{ ms}$ ; on observe alors une diminution du rayon de la tache. À  $t = 250 \text{ ms}$ , la rétractation s'arrête et la croissance de la tache reprend. La fracture apparaissant à  $t = 200 \text{ ms}$ , l'arrêt de la rétractation coïncide donc avec l'apparition de la fracture.



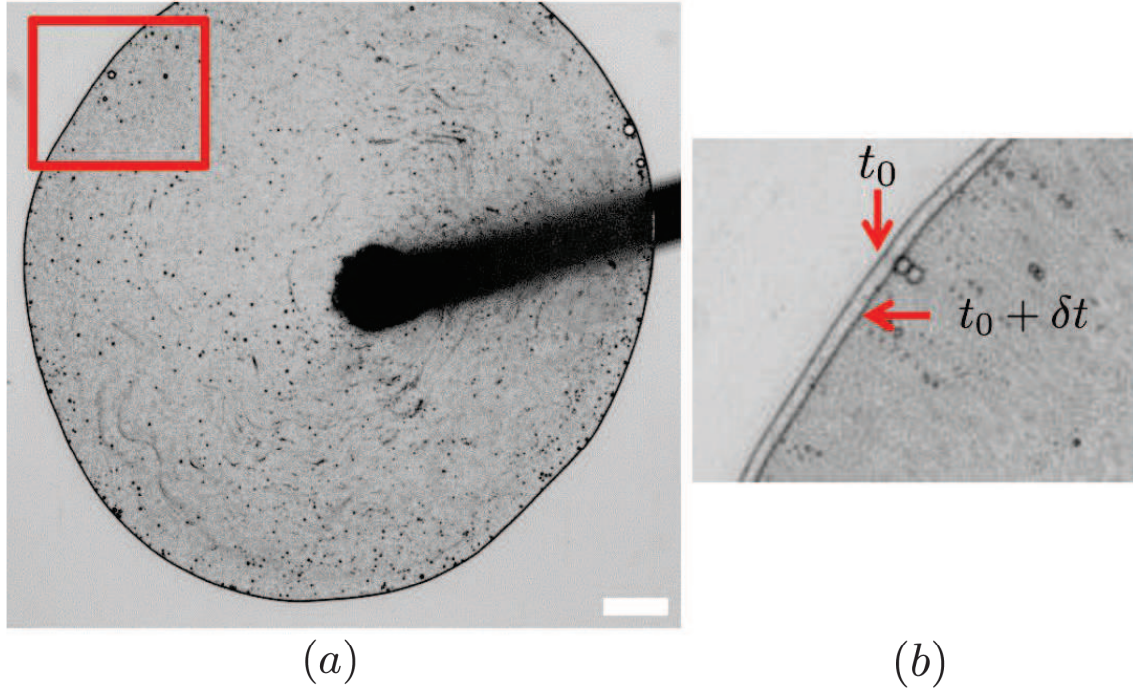


FIGURE 2.15 – Tache d’une microémulsion connectée de paramètres  $\Phi = 10\%$ ,  $N_s = 10$  lors d’une injection d’huile à un débit de 40mL/min. Barre 6 mm. A gauche, au repos avant l’injection. A droite, superposition de 2 images : l’une est prise avant l’injection à  $t_0$ , l’autre avant l’apparition de la fracture, à  $t_0 + \delta t$ .

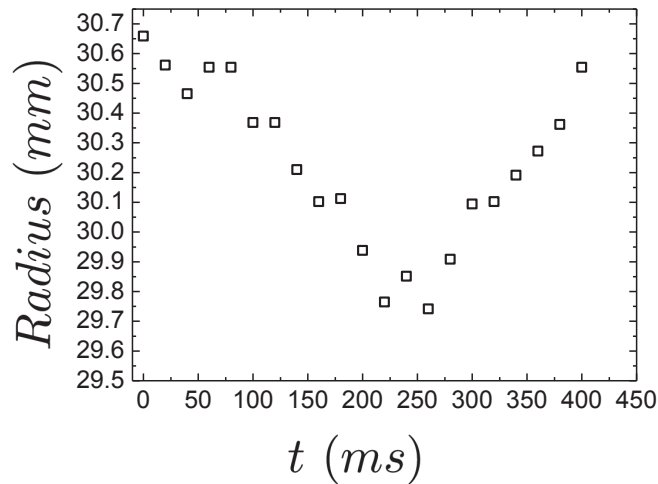


FIGURE 2.16 – Évolution du rayon de la tache de gel en fonction du temps. La fracture apparaît à  $t = 200$  ms.

Afin de limiter le phénomène de rétractation, nous avons décidé de travailler avec des plaques de dimensions réduites ( $15 \times 15$  cm) et plus épaisses. À nombre de serre-joints identique, le serrage sera plus efficace si les plaques de verre sont plus petites. De plus, l’utilisation de plaques plus épaisses limitera la flexion des plaques. Nous avons ainsi observé une diminution notable des effets de rétractation du gel lors de nos expériences.

## Adh rence des  chantillons sur le verre

### Adh rence des micro mulsion connect es

Dans le chapitre 3, nous avons travaill  sur une micro mulsion poss dant un module  lastique de 1600 Pa et un temps de relaxation de  $\tau = 0.67$  s. Afin d' tendre cette  tude, nous avons souhait  pouvoir explorer une vari t  de modules  lastiques et de temps de relaxation. Nous avons donc tent  de r aliser des exp riences de fractures sur une micro mulsion connect e de param tres  $\Phi = 10\%$  et  $N_s = 4$  poss dant un module  lastique de 160 Pa. On montre un exemple sur la figure 2.17. Pour ces exp riences, nous avons choisi de colorer le gel   l'aide de bleu de m thyl ne, ce qui a permis d'observer une zone nettement plus claire   l'avant de la pointe de fracture. Cette zone plus claire est caract ristique d'une zone o  l' paisseur du gel est moins grande, signe qu'une poche d'huile s'est form e sur au moins l'une des deux surfaces. Lors de nos diff rentes exp riences sur cette micro mulsion, nous avons observ  une comp tition entre ce ph nom ne de surface, et la fracture dans le volume rendant l' tude de la fracture dans des micro mulsions connect es   faible module impossible.

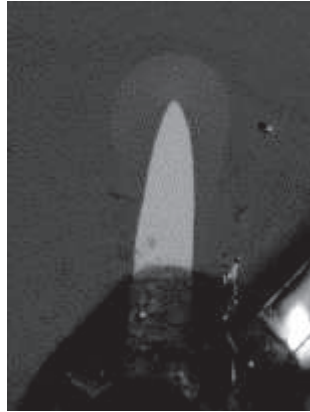


FIGURE 2.17 – Fracture dans une micro mulsion de param tres  $\Phi = 10\%$ ,  $N_s = 4$

### Cas des micelles g antes pont es

Lors des exp riences du chapitre 4, nous avons rencontr  des probl mes similaires   ceux d crits au paragraphe pr c dent. La figure 2.18 montre un motif typique observ  lors d'une exp rience o  le gel se d colle des surfaces. Au lieu de former des fractures en volume, l'huile forme un motif de fractures adh sives.

Afin de tenter de rem dier au probl me, nous avons rendu les surfaces plus hydrophiles afin de favoriser l'adh rence du gel sur les surfaces. Nous avons opt  pour un traitement par acide sulfochromique en immergeant les plaques dans une solution d'acide sulfochromique pendant une heure (trente minutes pour chaque face des plaques) avant l'exp rience. Dans le cas de micelles pont es poss dant un param tre  $R_{surf}$  suffisamment grand ( $0.2 \leq R_{surf} \leq 0.5$ ), nous ne distinguons pas de diff rences quantitatives sur les fractures obtenues, comme en attestent les figures 2.19(a) et 2.19(b).

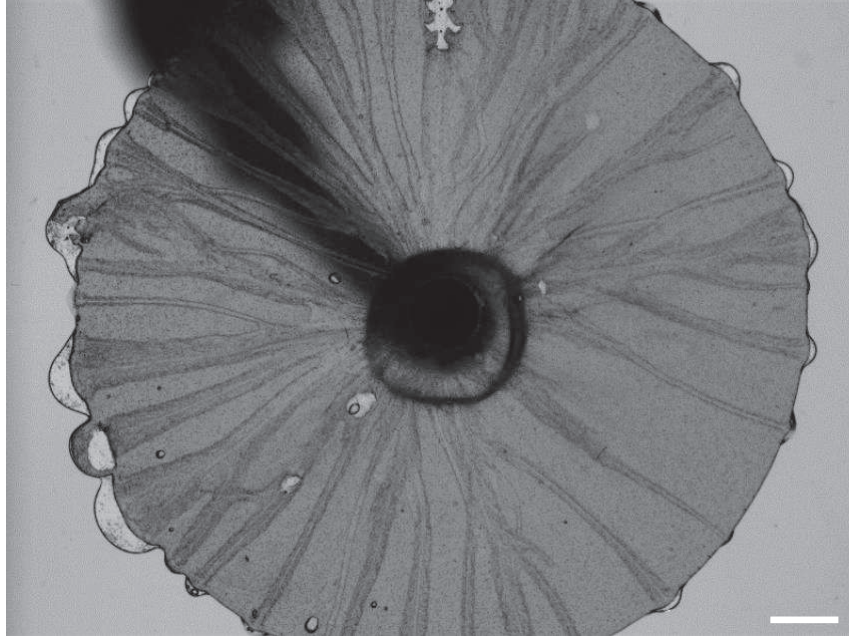
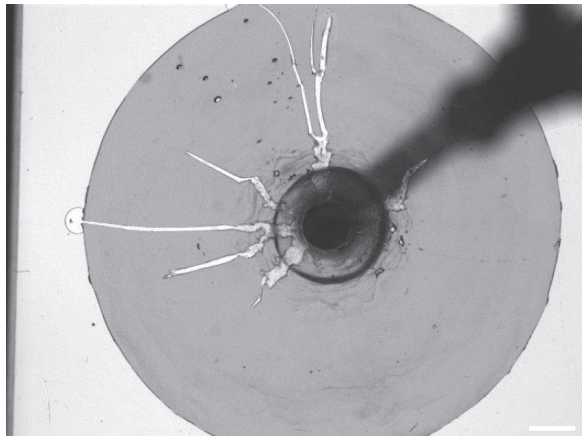
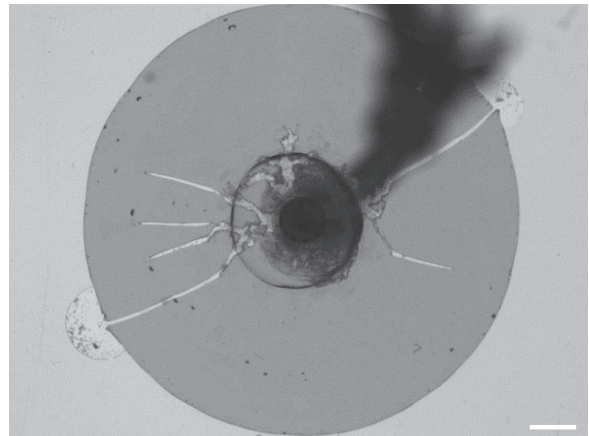


FIGURE 2.18 – Fracture dans une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $\beta = 55\%$ , et  $R_{surf} = 0$ . Barre 6 mm



(a)



(b)

FIGURE 2.19 – Motifs de fracture d'une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $\beta = 55\%$ , et  $R_{surf} = 0.4$ . Plaques nettoyées (a) sans acide sulfochromique (b) avec acide sulfochromique. Barres 6 mm

Néanmoins, pour  $R_{surf} < 0.2$ , le problème reste entier. Il faudrait donc trouver d'autres voies pour améliorer l'adhérence du gel sur les plaques. Ce problème n'est pas résolu.

## 2.3 Techniques d'analyses

Les observations reposant sur des acquisitions vidéo à haute cadence, nous avons mis au point des techniques pour extraire des données à partir d'images. Je présenterai dans un premier temps la méthode utilisée pour pouvoir extraire la forme des doigts/fractures et ainsi pouvoir mesurer leurs rayons de courbure. Je présenterai ensuite la méthode utilisée pour extraire les champs des déplacements à partir de la mesure de la fonction de corrélation entre deux images.

### 2.3.1 Extraction de la forme d'un doigt ou d'une fracture

Par analyse d'image à l'aide du logiciel imageJ, on réalise un relevé de la position successive de la pointe d'une fracture ou d'un doigt. On mesure deux paramètres : la vitesse instantanée de pointe  $V_{tip}$  et la direction de propagation. Connaissant la direction de propagation nous pouvons définir sa normale (figure 2.20(a) et 2.20(b)), et mesurer le niveau de gris le long de cette normale (figure 2.21). Le signal mesuré comporte deux parties. Une partie est constante, au bruit expérimental près, le long de ligne; c'est le signal associé au gel. La seconde partie correspond à un puits de signal qui est la signature de la fracture (les interfaces et l'huile colorée possédant un signal moins intense que celui du gel). La largeur  $W$  de la fracture est définie comme la largeur du creux dans le profil d'intensité. La profondeur du puits est définie par la différence d'intensité  $\Delta I$  entre le signal moyen associé au gel et l'intensité minimale dans le puits. On mesure la largeur du puits pour une intensité donnée qui est définie comme :  $I_{gel} - 1/10\Delta I$  où  $I_{gel}$  est l'intensité moyenne associée au gel. On déplace cette normale le long de la fracture ou du doigt par pas (d'une longueur correspondant à 1 ou 2 pixels). L'épaisseur des interfaces étant de  $2 \pm 1$  pixels, la précision de la mesure de la position de la pointe ainsi que de la largeur de la fracture est de  $2 \pm 1$  pixels soit 0.17 mm

En déplaçant cette normale le long de la fracture ou du doigt, nous pouvons ainsi mesurer leurs largeurs en fonction de la distance à leur pointe. Ces courbes permettent de mesurer la largeur  $W$  d'un doigt ou d'une fracture en fonction de la distance  $l$  à leur pointe. Les figures 2.22(a) et 2.22(b) montrent des exemples de profils obtenus dans le cas d'un doigt et d'une fracture.

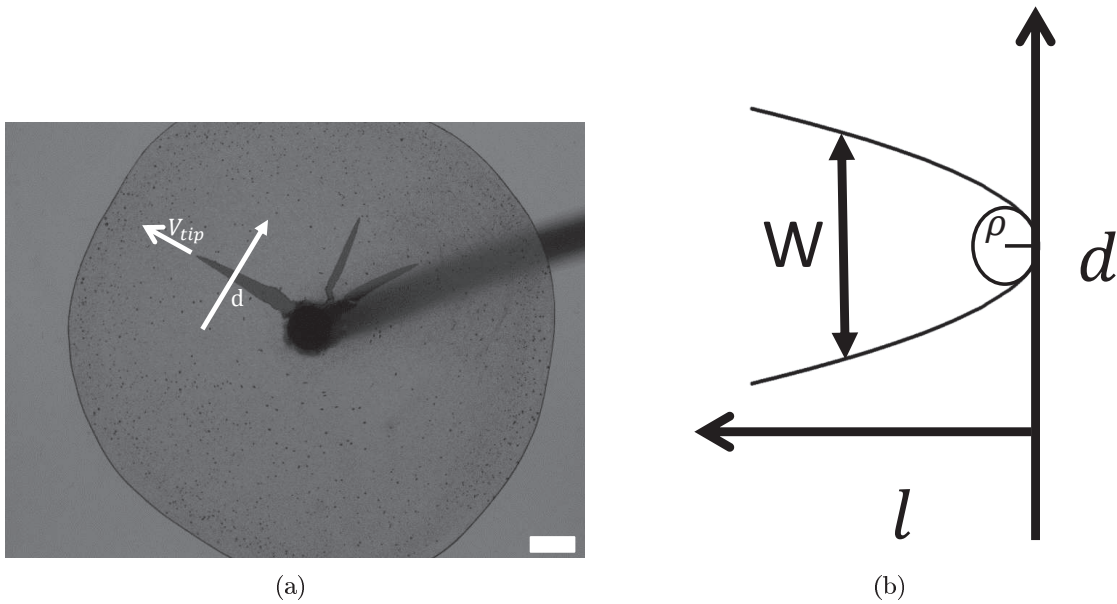


FIGURE 2.20 – Extraction du signal associé à la largeur de la fracture. (a) Barre 6 mm

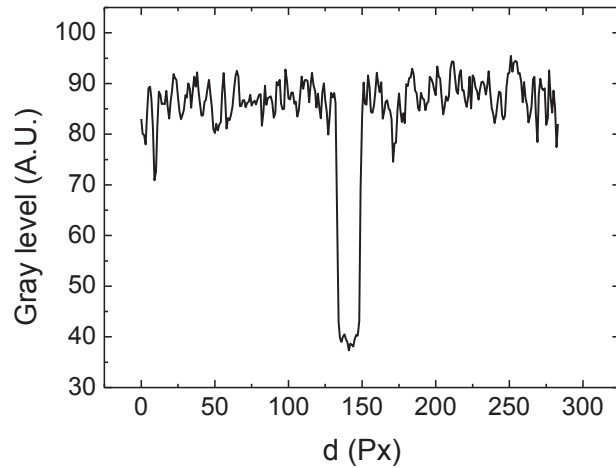


FIGURE 2.21 – Profil d'intensité du niveau de gris le long de la normale à la direction de propagation.

Afin d'extraire le rayon de courbure associé à la pointe d'un doigt ou d'une fracture, nous avons ajusté les données expérimentales par la loi parabolique :  $W = 2\sqrt{2\rho l}$  comme montré sur les figures 2.22(a) et 2.22(b).

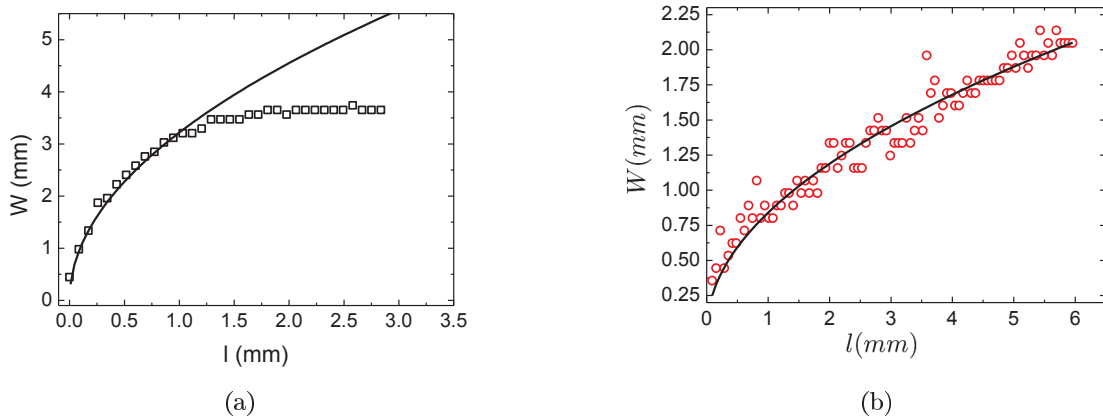


FIGURE 2.22 – Profils typiques observés lors d'une analyse de profil. Les symboles représentent les données expérimentales, la ligne représente l'ajustement parabolique. (a) Doigt avançant à une vitesse de  $V_{tip} = 0.08$  mm/s. (b) Fracture se propageant à une vitesse de  $V_{tip} = 36$  mm/s

### 2.3.2 Mesure des champs de déplacement : Particule Image Velocimetry

En plus de la forme et de la vitesse de la pointe des doigts ou des fractures, on souhaite avoir accès au champ des déplacements du gel autour de ces structures. La vélocimétrie par image de particules est une technique permettant de remonter au champ de déplacement à partir du mouvement de particules traçantes. En guise de particules traçantes, on a choisi de disperser des particules de silice d'une taille comprise entre  $40 \mu\text{m}$  et  $63 \mu\text{m}$ . On a travaillé à une concentration en particules de 1% en masse. La rhéologie des gels transitoires avec particules a été mesurée et comparée à celle d'un gel sans particules afin de s'assurer que les propriétés rhéologiques restaient inchangées. A partir de deux images séparées d'un temps  $\delta t$  fixé, nous pouvons estimer les déplacements en réalisant une corrélation croisée des deux images.

L'image est tout d'abord découpée en sections carrées de 10 Pixels de côté appelées ROI (pour Region Of Interest). Pour une ROI donnée, à l'instant  $t$ , se trouve un motif particulier. À l'instant  $t + \delta t$  on va chercher les déplacements  $d_x^i$  et  $d_y^i$  la ROI afin de trouver une ROI dont le motif est le plus semblable à celui de la ROI à l'instant  $t$ . Cette ROI est sélectionné en calculant la fonction de corrélation croisée entre la ROI de l'instant  $t$  et celles de l'instant  $t + \delta t$ , la ROI la plus semblable étant celle pour laquelle la fonction de corrélation croisée est maximale. L'intervalle de temps entre deux images est choisi de manière à ce que les déplacements les plus rapides soient toujours inférieurs à la taille d'une ROI, soit 10 pixels. Pour réaliser la corrélation croisée, nous avons utilisé un programme développé au laboratoire par L. Cipelletti. On pourra trouver des détails supplémentaires dans la référence [88]. Les figures 2.23(a) et 2.23(b) montrent un exemple de résultats obtenus.

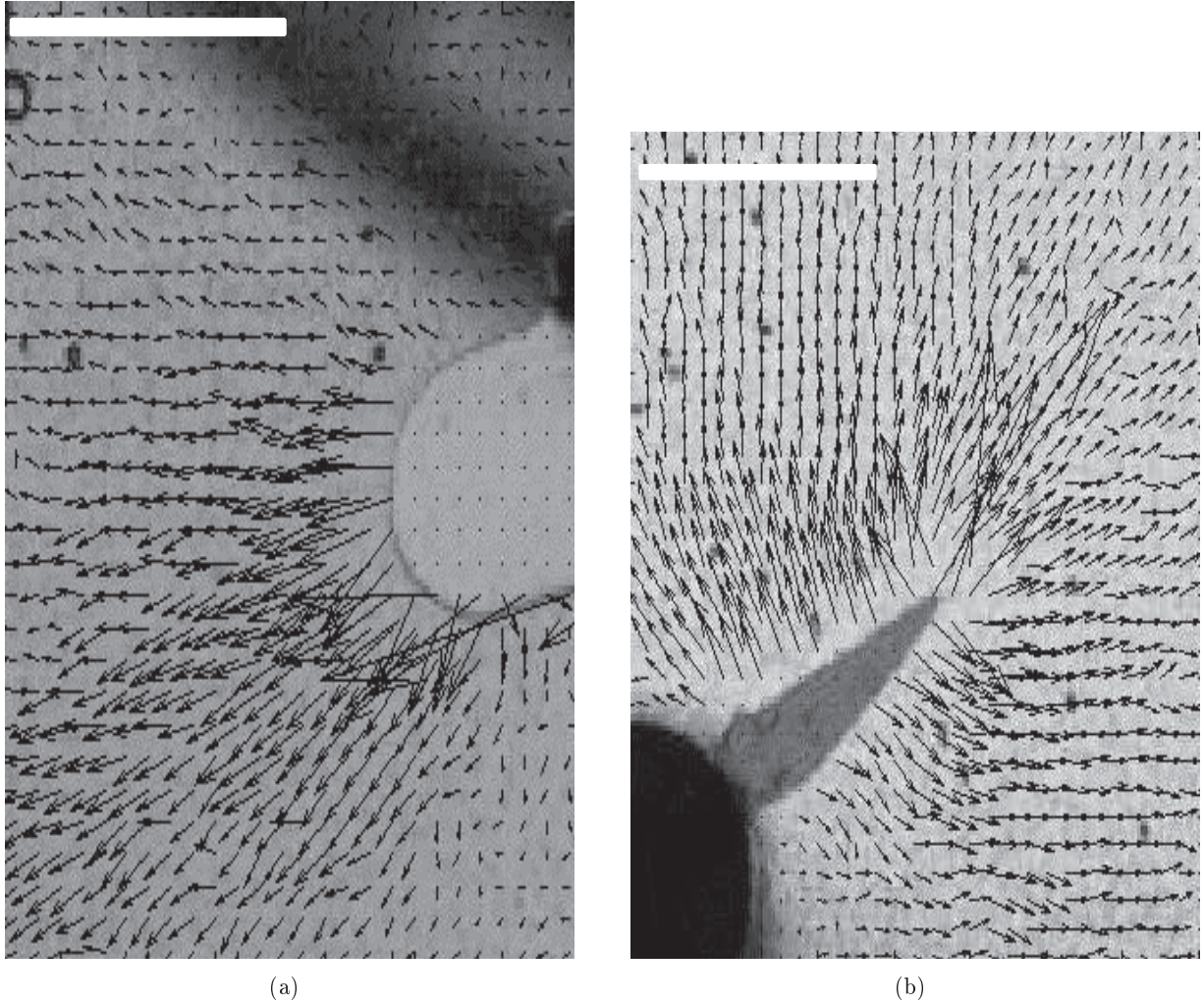


FIGURE 2.23 – Champs des déplacements mesurés par PIV : (a) Cas d'un doigt se déplaçant à une vitesse de  $V_{tip} = 0.08$  mm/s. (b) Cas d'une fracture se propageant à une vitesse de  $V_{tip} = 6.38$  mm/s

Les déplacements de chaque ROI  $i$  (noté  $\Delta D^i$ ) sont ensuite séparés en deux composantes :  $\Delta D^i = d_{\parallel}^i \mathbf{x} + d_{\perp}^i \mathbf{y}$ .  $d_{\parallel}^i$  correspond au déplacement parallèle à la direction de propagation,  $d_{\perp}^i$  correspond au déplacement normal à la direction de propagation. Nous avons réalisé deux types d'analyse à partir des données brutes : à une distance  $r$  fixée de la pointe, nous avons mesuré l'évolution des deux composantes  $d_{\parallel}^i$  et  $d_{\perp}^i$  autour de la fracture, comme le montre la figure 2.24. On peut aussi extrapoler le champ de déplacement au voisinage de la pointe de fracture à l'aide de la procédure décrite au paragraphe suivant.

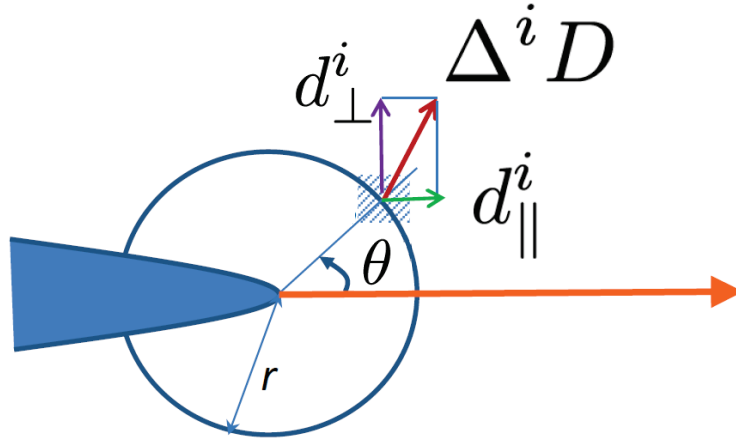


FIGURE 2.24 – Définition de  $d_{||}^i$  et de  $d_{\perp}^i$  pour une ROI  $i$ .

### Évaluation de la vitesse du gel proche de la pointe de fracture.

Nous n'avons pas accès de manière directe à la vitesse proche de la pointe. Quand une interface huile/gel se trouve dans une ROI, il est impossible de dire si le déplacement calculé par PIV est associé au mouvement du gel ou de l'interface. On ne va donc prendre en compte que les ROI à l'intérieur desquelles ne se trouve que du gel. Cela permet de s'assurer que le champ des déplacements mesuré reflète bien le mouvement du gel. Afin d'avoir accès à une mesure proche de la pointe de fracture, pour déterminer les déplacements du gel autour de la pointe, on doit extrapoler le champ des déplacements à la position de la pointe de fracture.

Pour ce faire, on définit une ligne partant de la pointe de la fracture (ou du doigt), orientée parallèlement à la direction de propagation. On réalise ensuite une interpolation linéaire du champ sur chaque point de cette ligne, cela permet d'obtenir l'évolution du déplacement dans la direction de propagation (la composante  $d_{||}$ ) comme montré à la figure 2.25.

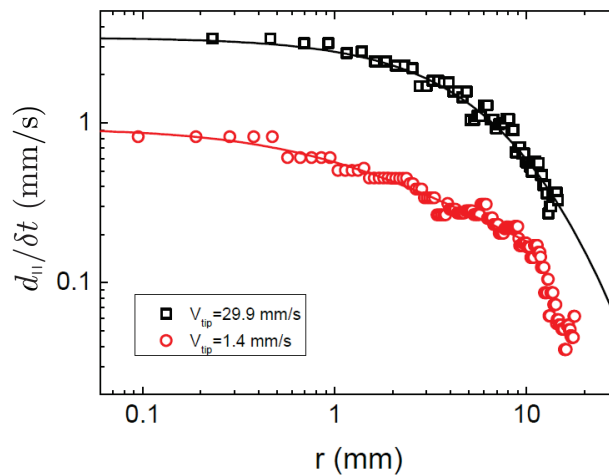


FIGURE 2.25 – Évolution de la composante parallèle à la direction de propagation  $d_{||}$  du champ de déplacement le long de la direction de propagation divisée par l'intervalle de temps  $\delta t$  utilisé pour réaliser la corrélation d'image. Les symboles représentent les données expérimentales, la ligne correspond à l'ajustement par la loi de puissance tronquée définie dans le texte.

On remarque que l'évolution du déplacement suit une loi de puissance quand on se place à grande distance devant le doigt ou la fracture. A faible distance, le déplacement tend vers une constante que nous définissons comme la vitesse du gel à l'interface huile/gel. En ajustant les données à l'aide d'une loi de puissance tronquée par une constante aux faibles distances :  $d_{||} = A \cdot (r + B)^{-C}$ . Nous pouvons ainsi remonter à la vitesse du gel à l'interface huile/gel en évaluant cette fonction à  $r = 0$  :  $V_{gel}^0 = AB^{-C}$ , les trois paramètres  $A$ ,  $B$ , et  $C$  étant les trois paramètres d'ajustement du modèle.



## Chapitre 3

# Transition digitation-fracture dans les microémulsions connectées

Dans ce chapitre, nous allons nous concentrer sur le système de microémulsions connectées décrit au chapitre 2.1.1. Nous allons définir des critères quantitatifs permettant de distinguer les doigts de Saffman-Taylor des fractures. On discutera notamment le mécanisme physique à l'origine de la transition entre un régime de doigts et un régime de fractures. Une seconde partie de ce chapitre sera consacrée à l'étude et la modélisation des fractures.

### 3.1 Observations expérimentales.

Nous allons utiliser le protocole expérimental décrit au paragraphe 2.2.2. Il consiste en l'injection d'une huile de colza (que l'on peut éventuellement colorer à l'aide du colorant "rouge soudan IV") dans une microémulsion connectée. En fonction du débit d'huile injecté, on observe différents motifs présentés à la figure 3.1.

En faisant varier le débit d'injection, on explore une large gamme de comportements. A faible débit, on observe un motif composé de digitations arrondies rappelant des doigts de Saffman-Taylor (figure 3.1(a)). En augmentant le débit, le motif change et on observe dans ce cas des motifs beaucoup plus fins et plus pointus (figure 3.1(b)). Si l'on augmente encore le débit, le motif précédent se ramifie (figure 3.1(c)). On se concentrera sur des structures non ramifiées afin de pouvoir examiner des objets individuels. Le contrôle du débit ne permet pas de contrôler directement la vitesse de propagation. Néanmoins, à un débit donné, nous avons pu mesurer la plage de variation de la vitesse de propagation de la pointe de l'instabilité que l'on montre sur la figure 3.2. Cette courbe nous montre que la gamme de vitesse de pointe de fracture accessible augmente avec le débit d'injection.

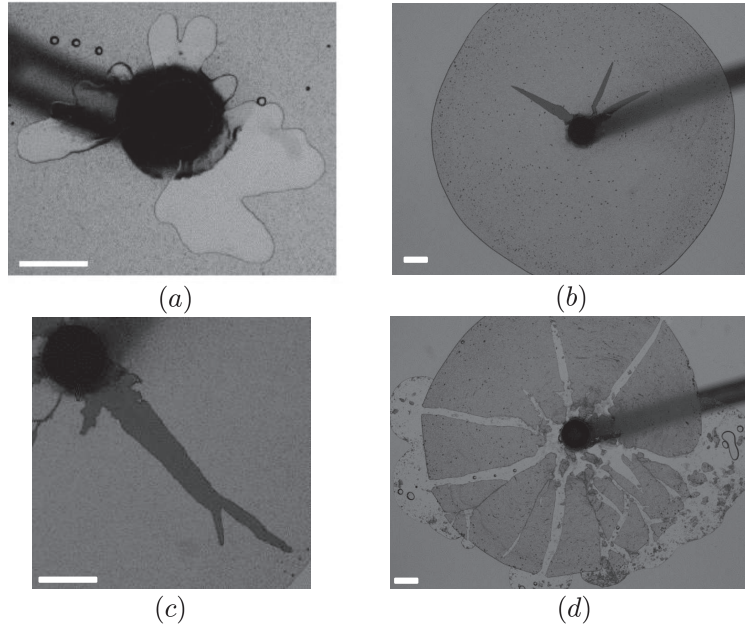


FIGURE 3.1 – Motifs observés à différents débits. (a)  $Q_v = 0.01$  mL/min motif ressemblant à un motif de digitation de Saffman Taylor. (b)  $Q_v = 2$  mL/min motif ressemblant à un motif de fracture. Pour cette expérience, l’huile a été colorée pour augmenter le contraste entre le gel et l’huile. (c)  $Q_v = 10$  mL/min fracture qui branche, l’huile a été colorée pour augmenter le contraste entre le gel et l’huile. (d)  $Q_v = 40$  mL/min Les motifs de fracture deviennent très complexes composé de branchements multiples. Barres 6 mm.

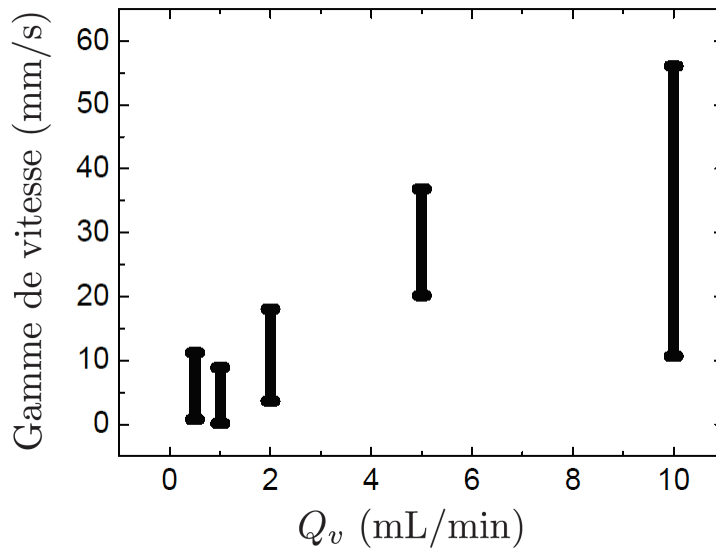


FIGURE 3.2 – Gamme de vitesse de pointe explorée pour chacun des débits utilisés. Les barres représentent l’intervalle de vitesse exploré, entre la fracture la plus lente et la fracture la plus rapide.

Nous analyserons tout d’abord le profil d’ouverture des différents motifs d’instabilité observés en fonction de la vitesse. Nous regarderons ensuite les champs de déplacement du gel autour de ces motifs. À partir de ces analyses, nous construirons des outils nous permettant de différencier doigts de Saffman-Taylor et fractures. Nous discuterons enfin le lien entre la structure du gel et la morphologie des fractures.

## 3.2 Différence de profils entre doigts et fractures

A l'aide de la technique décrite dans le paragraphe 2.3.1, nous avons extrait des images enregistrées, les profils des différents motifs observés lors des expériences. Les données obtenues sont ajustées par une loi de profil parabolique nous permettant de mesurer leur rayon de courbure en pointe. L'objectif est de décrire de façon quantitative les différences qui existent entre les deux types de motifs. Cela nous permettra de justifier l'appellation "doigt" et "fracture" pour chacun des motifs.

### 3.2.1 Ajustement parabolique des profils

Nous avons observé d'une part des objets de forme très arrondie à faibles débits (figure 3.3(a)) et d'autre part des objets qui apparaissent très "pointus" à plus forts débits (figure 3.3(b)) et qui rappellent des fractures comme on peut en observer [78] [77] dans des solutions de polymères associatifs. Nous étudions l'évolution des rayons de courbures des motifs en fonction de leurs vitesse de propagation. Nous avons ainsi mesuré leur largeur  $W(l)$  a une distance  $l$  de la pointe comme le montre la figure 3.3. En ajustant  $W$  à la loi  $W = 2\sqrt{2\rho l}$  décrite au chapitre 2.3.1, on peut déterminer le rayon de courbure  $\rho$  des différents motifs en pointe d'instabilité.

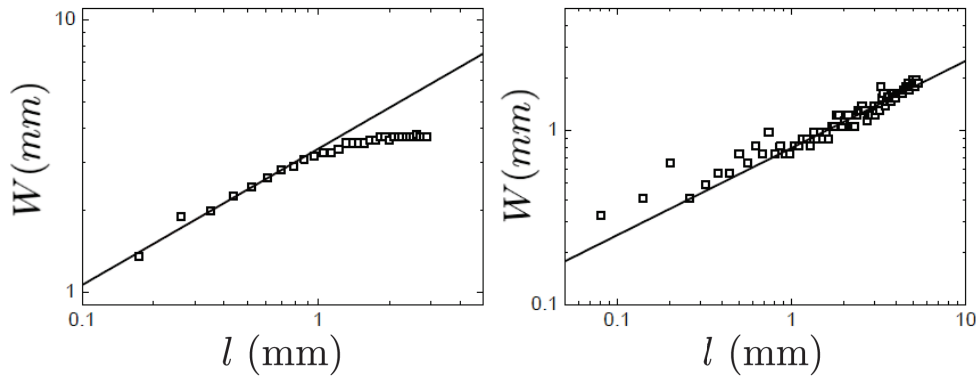


FIGURE 3.3 – Largeur du motif en fonction de la distance a la pointe. (a) pour un doigt se propageant à une vitesse  $V_{tip} = 0.08$  mm/s. (b) pour une fracture se propageant à une vitesse  $V_{tip} = 36$  mm/s. Les lignes continues représentent le meilleur ajustement parabolique pour les différentes courbes

Les figures 3.4(a) et (b) présentent la largeur des profils adimensionnés par le rayon de courbure en pointe d'instabilité :  $W/\rho = f(l/\rho)$ , pour différentes vitesses associées respectivement à des motifs arrondis (figure 3.4(a)) et à des motifs pointus (figure 3.4(b)). On remarque que l'ajustement parabolique de la figure 3.4(a) ne s'applique plus dès que  $l/\rho \gtrsim 1$ , pour les motifs de forme arrondie (correspondant aux faibles vitesses de propagation), tandis qu'elle reste valable pour  $l/\rho \gg 1$  pour des motifs plus pointus (correspondant à des vitesses plus importantes) comme on le voit sur la figure 3.4(b).

Par opposition aux motifs pointus discutés ci-après, les motifs arrondis observés à faible vitesse de propagation dont la largeur ne suit pas une loi parabolique à grandes distances de la pointe et n'est pas une fonction exclusive de  $l/\rho$  pour  $l > \rho$  seront appelés doigts par analogie avec l'instabilité de Saffman-Taylor. Pour les motifs se propageant à grande vitesse que l'on voit sur la figure 3.4(b), nous n'observons plus de déviation au comportement parabolique, au moins jusqu'à des distances de

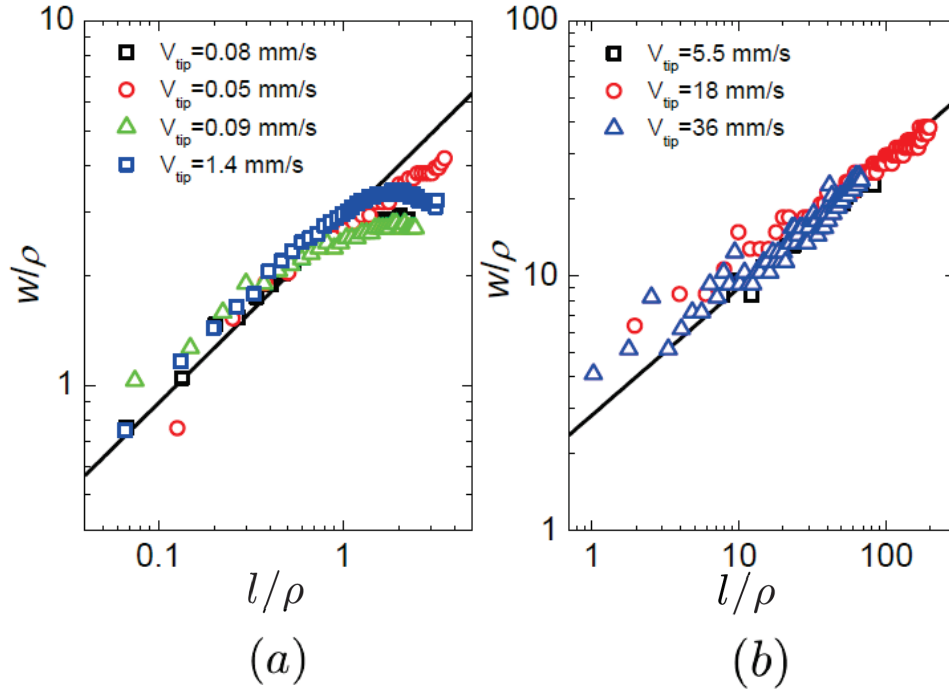


FIGURE 3.4 – Profils d'ouverture normalisés par le rayon de courbure pour différentes vitesses de propagation. (a) à vitesse faible pour des structures "arrondies". (b) à grande vitesse, pour des structures "pointues". La ligne représente un profil purement parabolique :  $W/\rho = 2\sqrt{2}\sqrt{l/\rho}$ .

l'ordre de 100 fois le rayon de courbure<sup>1</sup>. En unités adimensionnées toutes les courbes se rassemblent sur une courbe maîtresse indiquant que la forme du motif ne dépend pas de la vitesse de propagation.

La théorie de la fracture linéaire élastique [37] permet de connaître le profil d'ouverture d'une fracture dans un milieu élastique, ce profil est parabolique :

$$W(l) = \frac{K}{E'} \sqrt{\frac{8l}{\pi}} \quad (3.1)$$

$K$  et  $E'$  sont respectivement le coefficient de restitution des contraintes et le module d'Young effectif du gel.  $K$  dépend de la géométrie (le mode de chargement) de la fracture.  $E'$  dépend du gel considéré et de la géométrie de l'expérience. Ces paramètres seront présentés en détail dans la partie 3.4.3. Les profils d'ouverture des motifs étant similaires à ceux observés pour une fracture dans un milieu élastique font que l'on appellera ces motifs "fractures".

### 3.2.2 Évolution du rayon de courbure de la pointe avec la vitesse.

À l'aide des profils d'ouverture, on a mesuré le rayon de courbure de la pointe des doigts et des fractures en fonction de la vitesse de propagation  $V_{tip}$  (figure 3.5). Dans le cas des doigts, on explore une gamme de vitesses comprises entre 0.08 mm/s et 1.38 mm/s. Les fractures se propagent dans une gamme de vitesse comprise entre 1.47 mm/s et 60 mm/s.

On remarque une différence d'un ordre de grandeur du rayon de courbure entre doigts et fractures. Sur toute la gamme de vitesses étudiées, le rayon de courbure des doigts reste constant :

1. On remarque que pour ces motifs, on ne peut pas mesurer le profil pour des distances à la pointe inférieures à  $\rho$ ,  $\rho$  étant du même ordre de grandeur que la résolution spatiale de l'analyse de profil. C'est pourquoi on ne peut pas mesurer la largeur du profil pour des distance inférieures à  $\rho$ .

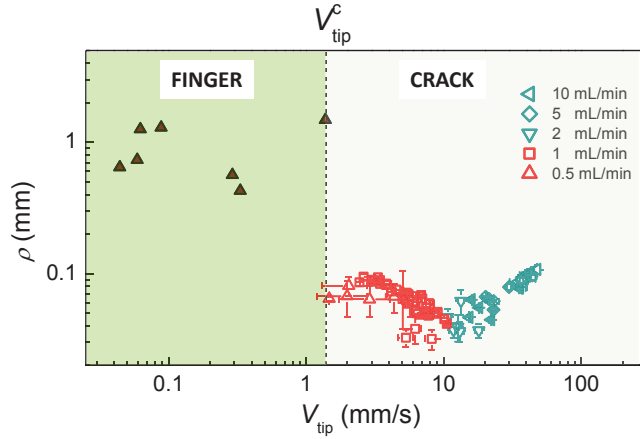


FIGURE 3.5 – Évolution du rayon de courbure en tête d’instabilités en fonction de leurs vitesse de propagation.

$\rho = (0.92 \pm 0.52)$  mm, la dispersion importante venant probablement des interactions entre doigts voisins. Les fractures se caractérisent par un rayon de courbure dix fois plus petit (qui varie entre 0.1 mm et 0.025 mm). Si on regarde plus en détail l’évolution du rayon de courbure en fonction de  $V_{tip}$  (figure 3.6), deux comportements distincts sont mis en évidence. Pour les fractures se propageant à une vitesse  $V_{tip} < 10$  mm/s, le rayon de courbure décroît avec la vitesse. Pour les fractures possédant une vitesse supérieure à  $V_{tip} \sim 10$  mm/s, le rayon de courbure croît avec la vitesse.

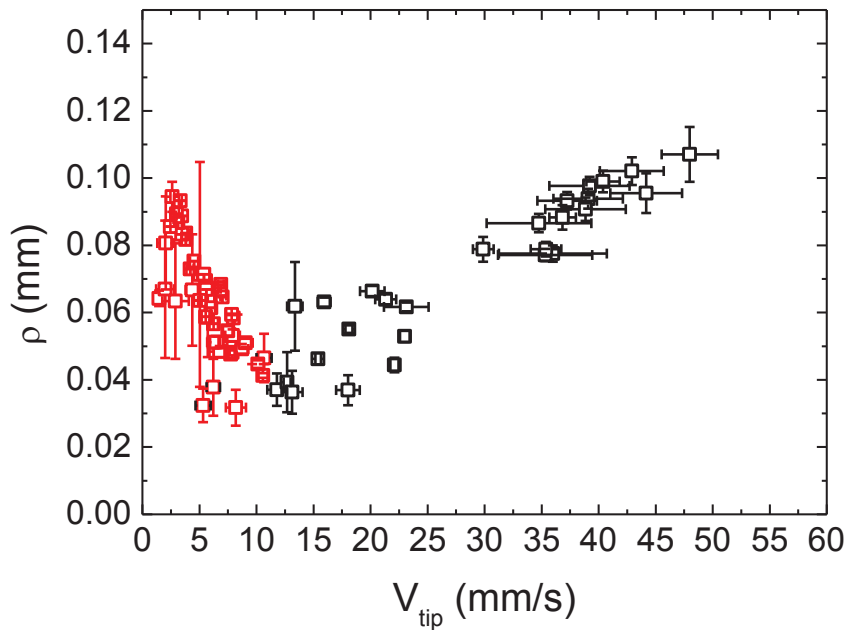


FIGURE 3.6 – Évolution du rayon de courbure avec la vitesse de propagation pour des fractures.

On peut construire deux vitesses caractéristiques  $V_{tip}^C$  et  $V_{tip}^{CC}$  associées à l’évolution du rayon de

courbure.

La première vitesse caractéristique  $V_{tip}^C$  est associée à la transition doigts/fractures.  $V_{tip}^C$  peut être définie comme la vitesse qu’atteint le doigt juste avant l’apparition de la fracture. Pour ce gel, cette vitesse vaut :  $V_{tip}^C = (1.425 \pm 0.045)$  mm/s, l’incertitude sur la mesure correspondant à la différence de vitesse entre la vitesse du doigt avant la naissance de la fracture et celle de la fracture juste après l’apparition de la fracture. La mesure a été réalisée sur cinq doigts en suivant le protocole décrit dans la section 2.2.2. On a tout d’abord commencé par réaliser une digitation visqueuse en injectant très lentement l’huile dans le gel (à un débit  $Q_v = 0.01$  mL/min). Ensuite, on a augmenté subitement le débit d’injection (en fixant un débit 1000 fois plus important, soit  $Q_v = 10$  mL/min). Cette brutale augmentation de débit fait augmenter la vitesse des doigts de manière très importante jusqu’à l’apparition de fractures comme on peut le voir sur la figure 3.7. Il est à noter que cette vitesse critique  $V_{tip}^C$  est la même quels que soient les doigts concernés. Cela semble indiquer qu’il s’agit d’une propriété du matériau. La transition doigt/fracture revient à passer d’un comportement fluide (le doigt) à un comportement élastique (la fracture). Cette vitesse de transition devrait ainsi être reliée au temps de relaxation  $\tau$  du matériau viscoélastique. Dans la section 3.4.2.1, nous discuterons des différents mécanismes susceptibles de provoquer une telle transition.

La seconde vitesse caractéristique  $V_{tip}^{CC}$  correspond à la vitesse de propagation pour laquelle nous observons un changement dans le sens de variation du rayon de courbure  $\rho$  en fonction de la vitesse de propagation de la fracture  $V_{tip}$ . Pour ce gel, l’inversion se produit pour :  $V_{tip}^{CC} \approx 10$  mm/s. Cette vitesse sera discutée dans la section 3.4.2.2.

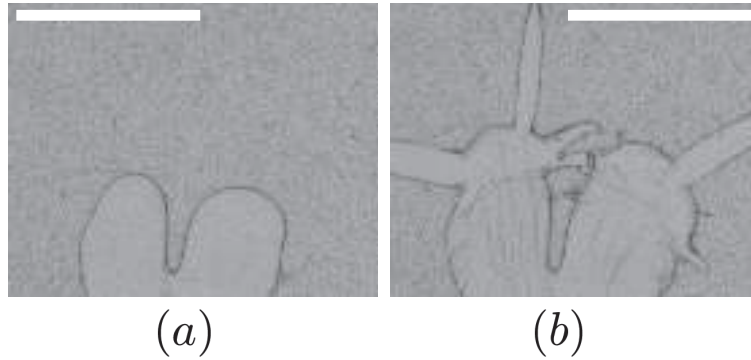


FIGURE 3.7 – Transition doigt-fracture lors d’un saut de débit entre  $Q_v = 0.01$  mL/min et  $Q_v = 10$  mL/min : (a) avant le saut, (b) après le saut. Barres : 6 mm

On a donc pu identifier une transition abrupte entre doigt et fracture. Cette transition s’accompagne d’un changement de forme et notamment d’une diminution importante du rayon de courbure. On s’est concentré pour l’instant sur ce qu’il se passe au niveau de l’interface entre le fluide viscoélastique et l’huile injectée, nous allons maintenant étudier la réponse du gel à la présence d’un doigt ou d’une fracture.

### 3.3 Analyse quantitative des champs de vitesse autour des doigts ou des fractures

Dans cette partie, on va s’intéresser au déplacement du gel autour d’un doigt ou d’une fracture. On va commencer par étudier comment le gel, au voisinage de la pointe d’une fracture ou d’un doigt, se comporte. Cela nous permettra de définir un second critère de différenciation entre doigt et fracture, complémentaire au critère sur le rayon de courbure. On regardera ensuite comment se comportent les champs de déplacement pour un doigt et pour une fracture lorsque l’on s’éloigne de

la pointe.

### 3.3.1 Comportement du gel au voisinage de la pointe d'un doigt et d'une fracture

Tel que précisé au chapitre 2.3.2, nous avons extrait les composantes parallèles  $d_{||}$  et perpendiculaires  $d_{\perp}$  à la direction de propagation du champ de déplacement (figure 3.8). On va se focaliser sur le déplacement  $d_{||}$  le long de la direction de propagation depuis la pointe de fracture. L'objectif est de déterminer quel est le comportement du gel au plus proche de l'interface huile/gel.

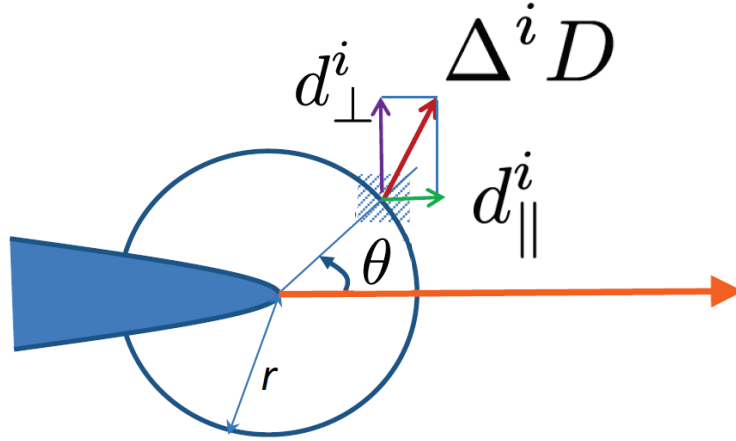


FIGURE 3.8 – Définitions pour une ROI  $i$  de  $d_{||}^i$  et de  $d_{\perp}^i$ , ainsi que de  $r$  et de  $\theta$ .

La dépendance de  $d_{||}$  avec la distance  $r$  à la pointe peut être modélisée par une loi de puissance tronquée par une constante aux petits  $r$  :  $d_{||} = A \cdot (r + B)^{-C}$ . On souhaite déterminer la vitesse de déplacement du gel dans le voisinage immédiat de la pointe d'un doigt ou d'une fracture, c'est-à-dire quand  $r \rightarrow 0$ . On va définir la vitesse du gel  $V_{gel}^0$  comme la vitesse du gel à l'interface que l'on peut estimer à partir de l'extrapolation des données expérimentales par la relation définie ci-dessus comme on peut le voir à la figure 3.9.

#### Comparaison entre la vitesse du gel à l'interface gel/huile et la vitesse de l'interface gel/huile.

On a comparé la valeur de la vitesse proche de la pointe  $V_{gel}^0$  à la vitesse de propagation  $V_{tip}$ . La figure 3.10 présente le rapport  $\frac{V_{gel}^0}{V_{tip}}$  en fonction de la vitesse de propagation  $V_{tip}$  pour des doigts et des fractures.

On observe des doigts dans la gamme des vitesses  $V_{tip} \leq V_{tip}^C$ . Pour cette gamme de vitesses le rapport  $\frac{V_{gel}^0}{V_{tip}}$  vaut  $0.98 \pm 0.09$ , c'est-à-dire que  $V_{gel}^0 \approx V_{tip}$ . Il existe donc une continuité des vitesses parallèles à la direction de propagation au passage de l'interface huile/gel. Cela nous confirme le caractère "liquide" de la digitation.

Quand  $V_{tip} \geq V_{tip}^C$ , on se situe dans un régime de fracturation. La figure 3.10 montre une chute abrupte du rapport  $\frac{V_{gel}^0}{V_{tip}}$  quand  $V_{tip} \sim V_{tip}^C$ . Pour toute la gamme des vitesses  $V_{tip} \geq V_{tip}^C$ ,  $\frac{V_{gel}^0}{V_{tip}} = 0.14 \pm 0.03$ . La pointe de fracture va donc avancer plus vite que le fluide autour de la pointe, on est donc en train

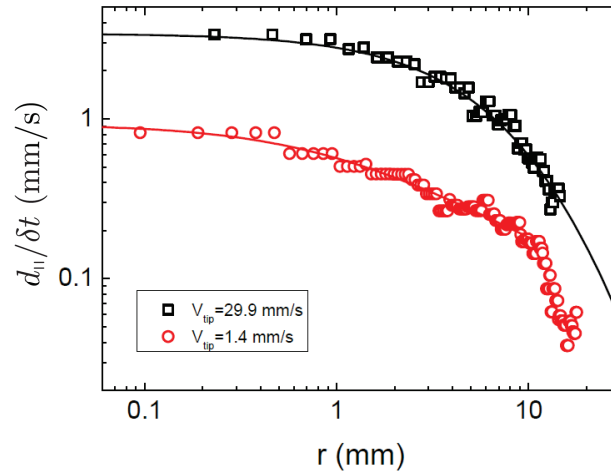


FIGURE 3.9 – Évolution de la composante parallèle à la direction de propagation  $d_{||}$  du champ de déplacement le long de la direction de propagation divisée par l'intervalle de temps  $\delta t$  utilisé pour réaliser la corrélation d'image. Les symboles représentent les données expérimentales, la ligne correspond à l'ajustement par la loi de puissance tronquée définie dans le texte.

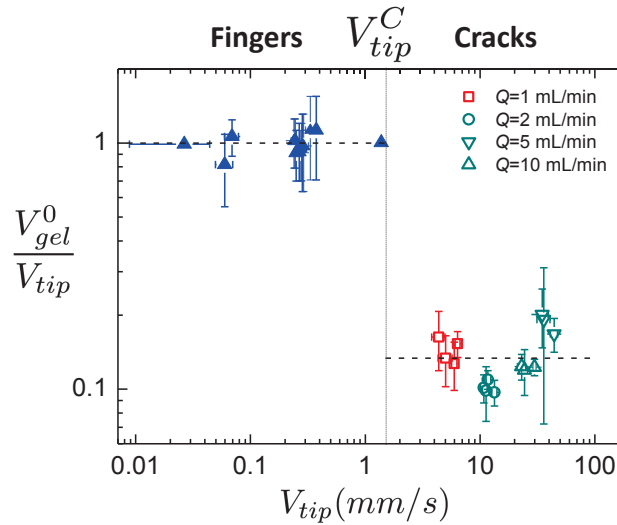


FIGURE 3.10 – Rapport entre la vitesse du gel proche de la pointe et la vitesse de propagation. La ligne verticale marque la limite entre doigts et fractures.

de "déchirer" le gel.

La figure 3.11 présente l'évolution de  $V_{gel}^0$  en fonction de la vitesse de propagation  $V_{tip}$ . Dans la partie digitation, la vitesse du gel varie linéairement avec la vitesse de propagation (puisque  $V_{gel}^0 \approx V_{tip}$ ) jusqu'à atteindre la vitesse de transition  $V_{tip}^C$ . Pour les vitesses  $V_{gel}^0 > V_{tip}$ , on observe dans un premier temps une diminution de la vitesse du gel à la pointe  $V_{gel}^0$  et dans un second temps une augmentation linéaire avec la vitesse de propagation de la pointe  $V_{tip}$ .  $V_{tip}^C$  est la vitesse maximale d'écoulement du gel. Il existe ainsi une plage de vitesse de propagation  $[V_{tip}^C, V_{tip}^{CC}]$  pour lesquelles le gel, dans la proximité immédiate de la fracture, a la possibilité de s'écouler (car la vitesse du gel est inférieure à la vitesse critique  $V_{tip}^C$ ). Malgré tout, ce sont bien des fractures que l'on observe dans



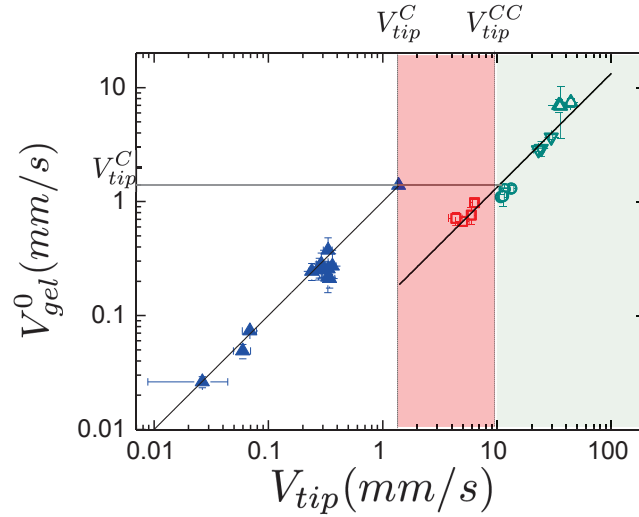


FIGURE 3.11 – Évolution de la vitesse du gel au voisinage de la pointe en fonction de la vitesse de propagation de la fracture ou du doigt.

cette zone. D'une part car le profil d'ouverture est parabolique même à grandes distances et d'autre part, s'il s'agissait d'un doigt, nous aurions une continuité des vitesses à l'interface. Nous observons donc des fractures pour lesquelles nous nous attendons à observer des effets de dissipation visqueuse supplémentaires du aux faibles vitesses du gel autour de la pointe de fracture. On va ainsi pouvoir définir une seconde vitesse caractéristique notée  $V_{tip}^{CC}$ . Cette vitesse est définie comme la vitesse de propagation que doit avoir la fracture pour que le gel au voisinage de la fracture se déplace plus rapidement que  $V_{tip}^C$ . Cette vitesse définit la vitesse de propagation critique à partir de laquelle nous allons considérer la fracture comme élastique (car le processus de fracture intervient sur des temps inférieurs au temps de relaxation du fluide).

### 3.3.2 Champ des déplacements autour des doigts ou des fractures

A l'aide de la technique décrite à la section 2.3.2 on a regardé la façon dont se déplace le gel autour d'un doigt et d'une fracture. On présentera dans un premier temps le comportement des doigts à différentes vitesses de propagation, avant d'analyser plus en détail celui des fractures.

La figure 3.12 montre les champs de déplacement associés à des doigts dont la vitesse de propagation s'étend sur plus d'un ordre de grandeur. Après avoir décrit un doigt loin de la transition, on regardera ce qu'il se passe au moment de la transition doigt/fracture.

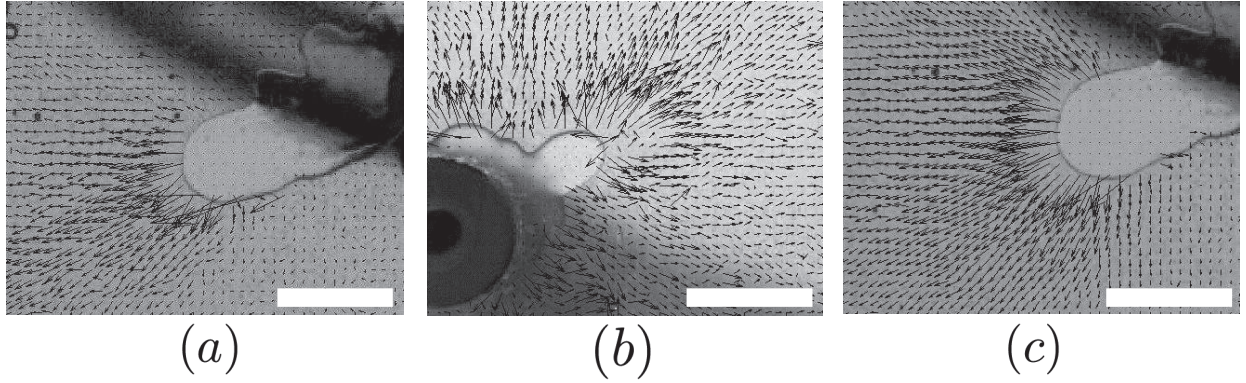


FIGURE 3.12 – Champs des déplacements autour de doigts de Saffman-Taylor. (a)  $V_{tip} = 0.08$  mm/s. (b)  $V_{tip} = 0.33$  mm/s. (c)  $V_{tip} = 1.4$  mm/s. Les flèches représentant le champ des déplacements ont été grossies 20 fois. Barres 6 mm

### 3.3.2.1 Déplacements autour d'un doigt loin de la transition digitation/fracture.

Tel que précisé aux paragraphes 2.3.2 et 3.3.1, nous avons extrait les composantes parallèles  $d_{||}$  et perpendiculaires  $d_{\perp}$  à la direction de propagation du champ des déplacements. Pour une distance à la pointe donnée, nous avons regardé comment ces deux composantes se comportent quand on se déplace autour de la pointe. L'angle  $\theta = 0$  correspond à la direction de propagation. Les données sont éventuellement adimensionnées par  $V_{gel}^0 \delta t$ , où  $V_{gel}^0$  est la vitesse du gel à la pointe telle que définie au paragraphe 3.3.1 et où  $\delta t$  est l'intervalle de temps utilisé pour réaliser la mesure de PIV (cf. chapitre 2). La figure 3.13 montre un profil typique de champ autour d'un doigt quand on se place à une distance à la pointe plus grande que le rayon de courbure du doigt. La limite de résolution de la mesure (ligne en pointillée de la figure 3.13(a)) est fixée en mesurant les déplacements moyens associé a une zone où le gel est immobile.

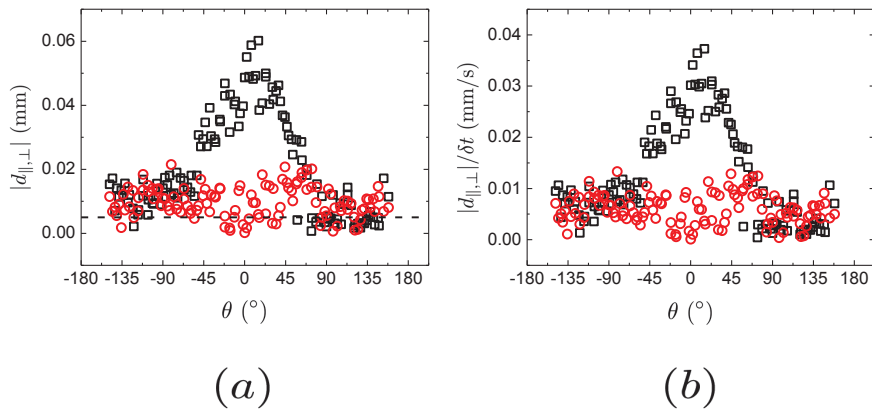


FIGURE 3.13 – Profil des déplacement  $d_{||}$  ( $\square$ ) et  $d_{\perp}$  ( $\circ$ ) autour d'un doigt se propageant à  $V_{tip} = 0.08$  mm/s à 4 mm de la pointe. (a) Données brutes, la ligne pointillée représente la limite de résolution de l'analyse. (b) Données divisées par  $\delta t$ , l'intervalle de temps utilisé pour réaliser la mesure de PIV est de : ( $\delta t = 1.6$  s)

Le déplacement parallèle à la direction de propagation est maximum le long de cette direction. Il va décroître quand on s'en écarte pour devenir minimal au niveau de l'interface gel/huile. Le déplacement perpendiculaire à la direction de propagation ne présente pas de dépendance angulaire et, pour une large gamme angulaire, est faible devant le déplacement dans la direction de propagation

et d'une valeur proche de la limite de résolution de l'expérience indiquant que l'on peut supposer que les déplacements  $d_{\perp}$  perpendiculaires à la direction de propagation sont nuls. A grand angle (c'est-à-dire lorsque l'on est proche de l'interface gel/huile), les deux composantes sont égales et proches de la limite de résolution de l'expérience. On en déduit que les déplacements aux grands angles sont quasiment inexistant. On peut en conclure que le déplacement du gel s'effectue essentiellement parallèlement à la direction de propagation. Ce déplacement est de plus localisé dans une zone à l'avant de la pointe du doigt, les déplacements proches des bords du doigt étant très faibles. La figure 3.14 schématise le comportement du gel autour du doigt.

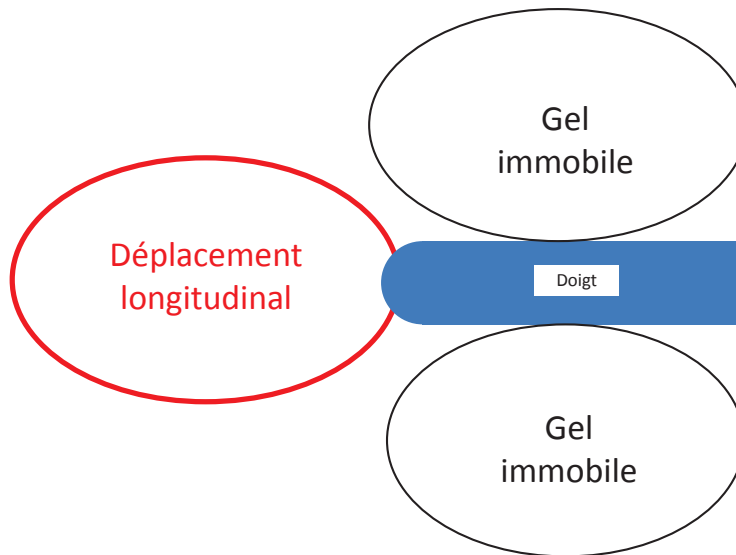


FIGURE 3.14 – Représentation schématique des déplacements autour d'un doigt.

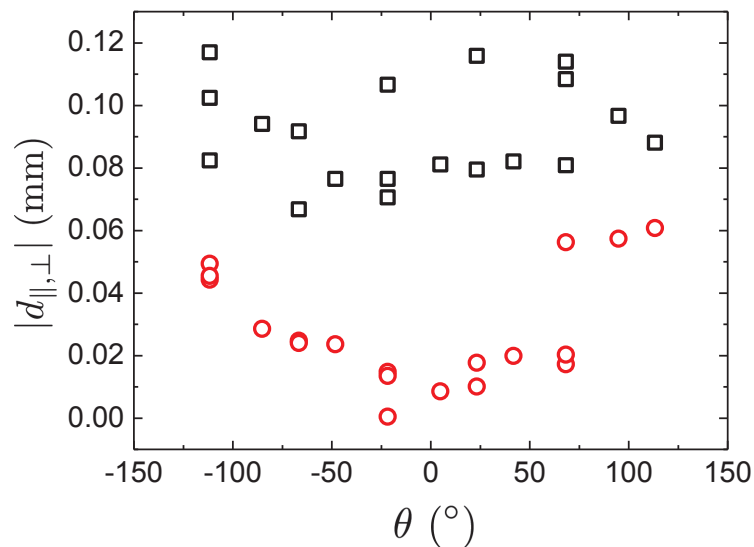


FIGURE 3.15 – Champ des déplacements  $d_{\parallel}$  (□) et  $d_{\perp}$  (○) pour une fracture se propageant à  $V_{tip} = 0.08$  mm/s à une distance de la pointe  $r \approx \rho$ .

La figure 3.15 montre un profil proche de la pointe du doigt à des distances comparables au rayon de courbure. La composante  $d_{||}$  reste sensiblement constante, tandis que l'on remarque l'apparition de composantes  $d_{\perp}$  qui ne sont pas observées quand  $r > \rho$ . Dans le cas où  $r > \rho$ , les composantes  $|d_{\perp}|$  sont constantes et valent :  $d_{\perp} = (0.01 \pm 0.005)$  mm. Cela représente un déplacement d'environ 0.11 pixel qui est légèrement plus grand de l'ordre de grandeur du bruit expérimental (pour cet intervalle de temps, le bruit est de l'ordre de 0.05 pixel comme signalé sur la figure 3.13). Quand  $r$  devient plus grand que le rayon de courbure du doigt, on peut ainsi considérer que les déplacements  $d_{\perp}$  sont nuls, ce qui n'est pas le cas quand on se place à  $r \approx \rho$ .

On va maintenant étudier le cas d'un doigt au voisinage de la transition doigt/fracture.

### 3.3.2.2 Déplacements autour d'un doigt proche de la transition digitation/fracture.

On considère ici le champ de déplacement du doigt le plus rapide, juste avant la nucléation de la fracture.

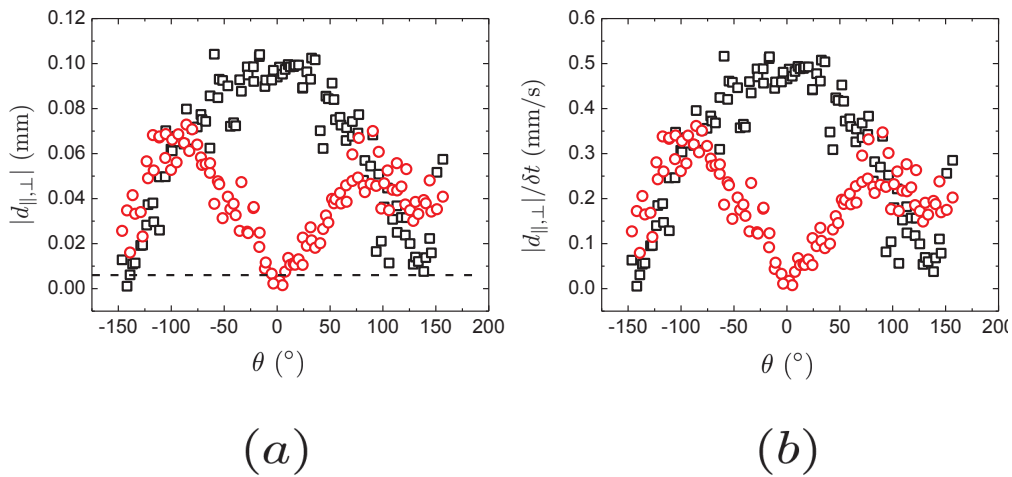


FIGURE 3.16 – Profil des déplacements  $d_{||}$  ( $\square$ ) et  $d_{\perp}$  ( $\circ$ ) autour d'un doigt se propageant à  $V_{tip} = 1.4$  mm/s à  $r = 3.6$  mm de la pointe.(a) Données brutes, la ligne pointillée représente la limite de résolution de l'analyse. (b) Données divisées par  $\delta t$ , l'intervalle de temps utilisé pour réaliser la mesure de PIV est :  $\delta t = 0.2$  s

Pour une même distance à la pointe, il est intéressant de comparer le champ des déplacements obtenu (figure 3.16(b)) à celui obtenu dans le cas d'un doigt loin de la transition (figure 3.13(b)). Pour les déplacements parallèles à la direction de propagation, on remarque que les déplacements du gel sont moins "piqués" autour de la valeur  $\theta = 0$  °. La différence la plus marquante entre les deux doigts concerne les déplacements perpendiculaires à la direction de propagation. Quand on se rapproche de la transition doigt/fracture, on note l'apparition de composantes normales à la direction de propagation qui étaient quasiment absentes dans le cas d'un doigt loin de la transition pour  $r > \rho$ . Par la suite, on va montrer que les composantes normales sont au moins aussi importantes que les composantes parallèles à la direction de propagation pour décrire l'ouverture d'une fracture. L'apparition de composantes normales dans le champ de déplacement a des distance supérieures au rayon de courbure peut être ainsi interprété comme une signature de l'apparition prochaine d'une fracture.

### 3.3.2.3 Déplacements autour de fractures

Les doigts se caractérisent par des déplacements essentiellement longitudinaux. On a noté que lorsqu'une fracture est sur le point d'apparaître dans la cellule, on observe l'apparition de composantes transverses dans les champs des déplacements. Pour les fractures ces composantes deviennent aussi importantes que les composantes dans la direction de propagation. La figure 3.17 montre différents profils à différentes vitesses que nous allons décrire.

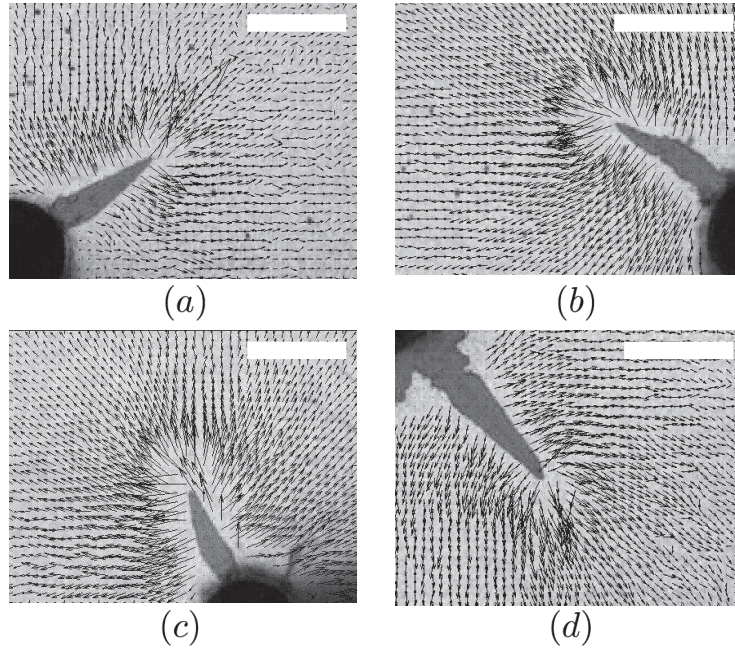


FIGURE 3.17 – Champs des déplacements autour de fractures. (a)  $V_{tip} = 6.38$  mm/s. (b)  $V_{tip} = 13.36$  mm/s. (c)  $V_{tip} = 29.88$  mm/s. (d)  $V_{tip} = 34.75$  mm/s. Barre 6 mm

On montre sur la figure 3.18(a) une courbe typique de l'évolution angulaire du champ à  $r = 3.6$  mm de la pointe de fracture. Tout comme dans le cas des doigts, on remarque que les composantes parallèles sont maximum le long de la direction de propagation et qu'elles diminuent jusqu'à s'annuler sur les bords de la fracture, c'est-à-dire aux positions angulaires les plus extrêmes de la figure 3.18(a) et (b) :  $\theta = \pm 150^\circ$ . On note ici l'importance des composantes perpendiculaires aux grands angles, c'est-à-dire aux interfaces huile/gel, qui deviennent maximales. Ce sont elles qui contrôlent l'ouverture de la fracture. En se plaçant à une distance donnée de la pointe de fracture, on regarde l'évolution du champ pour différentes vitesses de propagation de la fracture (figure 3.18(a) et (b)). On constate que les champs normalisés par  $V_{gel}^0 \delta t$  sont similaires. L'allure des champs pour les deux vitesses de propagation est identique, de plus on remarque que la maximum de  $|d_{||}| / (V_{gel}^0 \cdot \delta t)$  est identique pour les deux vitesses de propagation. Ce n'est donc pas la vitesse de propagation de la fracture qui contrôle la forme du champ de déplacement. En regardant l'évolution des champs en fonction de la distance à la pointe pour différentes vitesses (figure 3.19 dans le cas  $r = 3.6$  mm), on peut voir que les courbes correspondant aux différentes vitesses se superposent. La forme du champ de vitesse ne dépend donc pas de la vitesse de propagation de la fracture. Par la suite, on travaillera sur des données moyennées  $\langle |d_{\perp,||}| / V_{gel}^0 \cdot \delta t \rangle$  sur les quatre fractures représentées à la figure 3.17, qui couvrent une large gamme du spectre des vitesses de propagations observée lors de nos expériences de fracturation, pour chaque distance à la pointe considérée.

On a regardé, à distance donnée, le champ des déplacements autour d'une fracture. On a remarqué que la forme du champ des déplacements ne dépend pas de la vitesse de la pointe de fracture. On va maintenant étudier la dépendance des champs de déplacement avec la distance à la pointe de fracture.

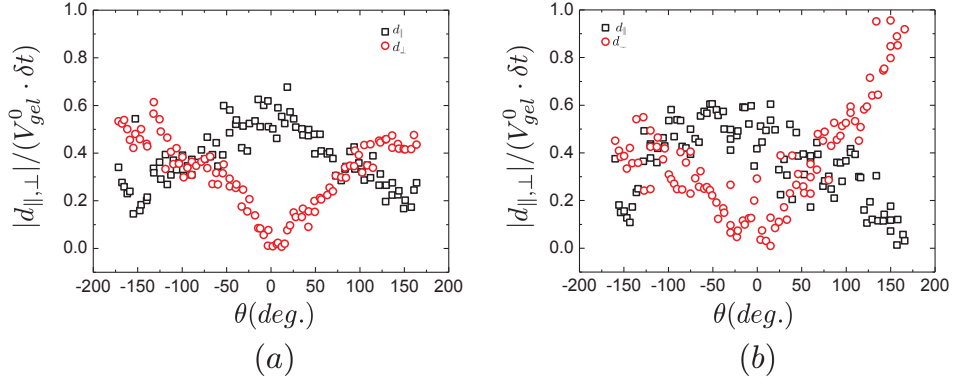


FIGURE 3.18 – Champs des déplacements  $d_{\parallel}$  ( $\square$ ) et  $d_{\perp}$  ( $\circ$ ) adimensionnés par  $V_{gel}^0 \cdot \delta t$  à  $r = 3.6$  mm de la pointe d'une fracture se déplaçant à : (a) 6.38 mm/s ; (b) 34.75 mm/s

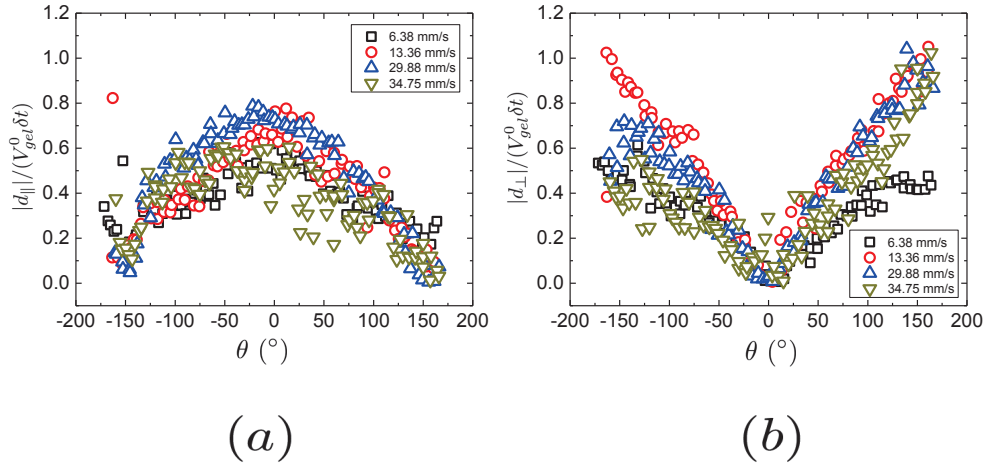


FIGURE 3.19 – Champs des déplacements normalisés par  $V_{gel}^0 \delta t$  à  $r = 3.6$  mm pour différentes vitesses de propagation  $V_{tip}$  comprises entre 6.38 mm/s et 34.75 mm/s. (a)  $d_{\parallel}$ . (b)  $d_{\perp}$

### 3.3.2.4 Courbe maîtresse du champ de déplacement

Nous allons étudier la dépendance avec la distance des champs des déplacements moyens, tels que définis à la section précédente. Les figures 3.20(a) et (b) représentent deux exemples de champs à des distances de 3.6 mm et 5.17 mm de la pointe respectivement.

On n'observe aucune différence qualitative entre les deux champs. On va donc créer une courbe maîtresse regroupant toutes les données sur une courbe unique. A partir d'une courbe de référence, nous appliquons un facteur multiplicatif  $1/A_{scale}$  sur les deux composantes du déplacement pour toutes les distances à la pointe. On voit sur la figure 3.21 que cela permet de regrouper toutes les courbes (sur un intervalle de distances à la pointe comprises entre 1.30 et 6.9 mm) sur une seule et unique courbe maîtresse.

Le facteur multiplicatif  $A_{scale}$  utilisé pour créer cette courbe maîtresse représente la dépendance du champ de déplacements avec la distance. La figure 3.22 montre la dépendance de ce facteur avec la distance à la pointe. Nous ajustons ces données par une loi de puissance :

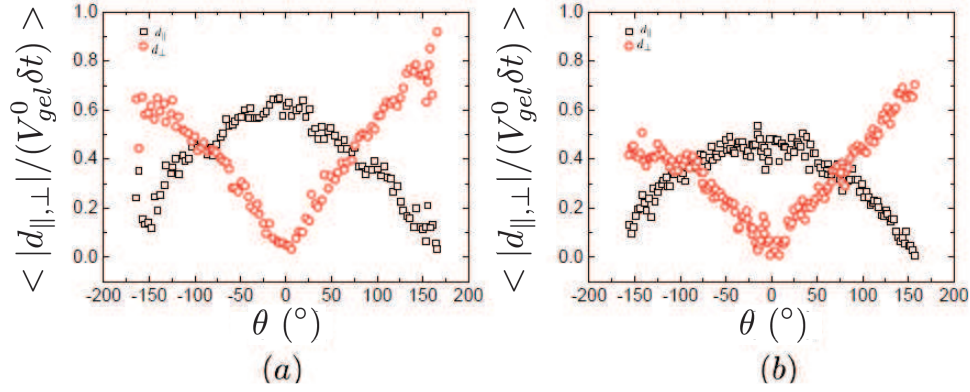


FIGURE 3.20 – Champs des déplacements moyennés sur les vitesses à : (a)  $r = 3.6$  mm ; (b)  $r = 5.17$  mm de la pointe.

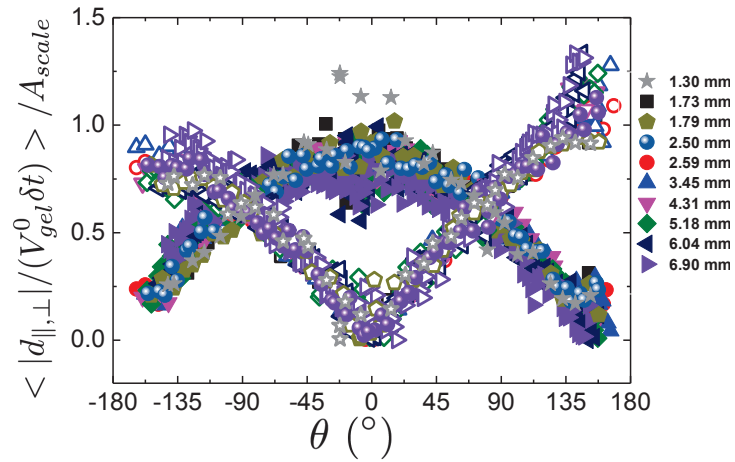


FIGURE 3.21 – Courbe maîtresse des champs des déplacements pour des distances comprises entre 1.8 mm et 8.8 mm

$$A_{scale} \approx r^{-p} \quad (3.2)$$

Ou  $p = 0.58 \pm 0.05$ , un exposant qui est proche (à l'erreur expérimentale près) de 0.5, la dépendance en distance du champ de déplacement semble ainsi varier suivant une loi de type :  $1/\sqrt{r}$  qui est la dépendance attendue pour un solide élastique fragile dans le cas d'une fracture en mode I . Dans le paragraphe 3.4.4, on modélisera les champ de déplacements, que l'on comparera au champ attendus pour une fracture dans un matériau purement élastique.

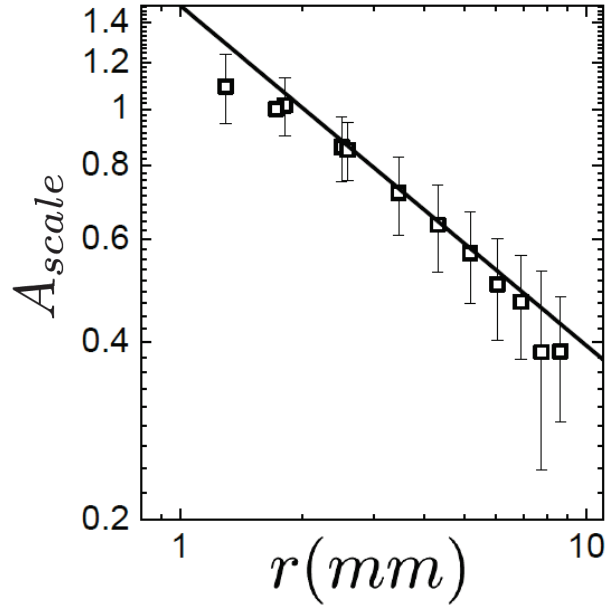


FIGURE 3.22 – Évolution du paramètre  $A_{scale}$  en fonction de la distance à la pointe de fracture. La ligne représente l’ajustement par une loi de puissance des données.

## 3.4 Discussions et interprétations des résultats

### 3.4.1 Pourquoi les fractures sont-elles toujours paraboliques ?

Nous avons établi que le profil d’ouverture de fracture est parabolique sur des grandes distances. Le profil d’ouverture dépendant de l’état de contrainte du matériau, nous avons tenté de raccorder les profils observés avec un modèle décrivant la fracture dans des matériaux viscoélastiques. Afin de décrire la façon dont une fracture se propage dans des élastomères réticulés, de Gennes a développé le modèle de la trompette viscoélastique [89] [90] qui permet de relier la forme de la fracture à la fréquence de sollicitation du matériau. La figure 3.23 d’après [14] résume ce que l’on obtient si l’on adapte ce modèle afin de décrire les fractures dans des fluides de Maxwell caractérisés par un module élastique  $G_0$  et un temps de relaxation  $\tau$  [14].

Dans ce modèle, le profil n’est parabolique que sur des distances inférieures à  $V_{tip}\tau$  où  $V_{tip}$  est la vitesse de propagation de la fracture et  $\tau$  le temps de relaxation du gel. La forme parabolique de la fracture signifie que le gel est sollicité de façon principalement élastique. On pourra ainsi le décrire comme un solide élastique de module de cisaillement  $G_0$ . Quand la longueur de la fracture  $L$  est telle que  $L > V_{tip}\tau$ , l’énergie perdue en volume devient importante. Cette dissipation va se traduire, sur la forme de la fracture, par un changement d’exposant dans l’expression du profil qui va passer de  $u(x) \propto x^{1/2}$  à  $u(x) \propto x^{3/2}$ , d’où la forme en trompette (figure 3.23).

Dans nos expériences, on mesure la longueur  $L$  d’une fracture en fonction de sa vitesse de propagation  $V_{tip}$ . Cette longueur est comparée à la taille caractéristique  $V_{tip}\tau$  du modèle. Comme précisé dans la section 3.2.1, toutes les fractures que l’on a observées ont une forme parabolique (figure 3.25(c) et (d)). La figure 3.24 représente l’évolution du rayon de courbure en fonction de la vitesse de la pointe de fracture. Pour les fractures se propageant à des vitesses de propagation telles que  $V_{tip} \geq 20\text{mm/s}$ , le modèle prévoit que le profil reste parabolique sur toute la longueur de la fracture (puisque  $L < V_{tip}\tau$ ). Pour toutes les fractures se propageant à des vitesses  $V_{tip}$  telles que  $V_{tip} \leq 20\text{mm/s}$ , le modèle prévoit que l’on s’écarte du profil parabolique. Pour ces fractures, les profils restent paraboliques même à des distances supérieures à  $V_{tip}\tau$  comme le montre les figures



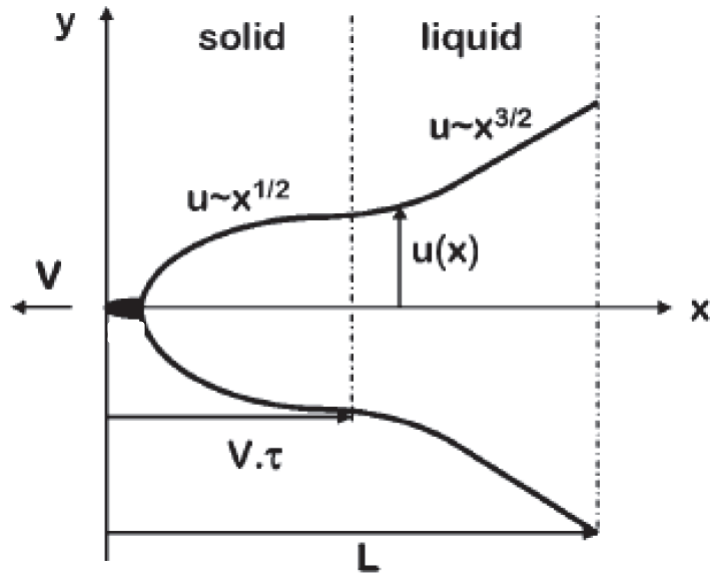


FIGURE 3.23 – Représentation schématique d’une fracture dans un fluide de Maxwell. D’après [14].

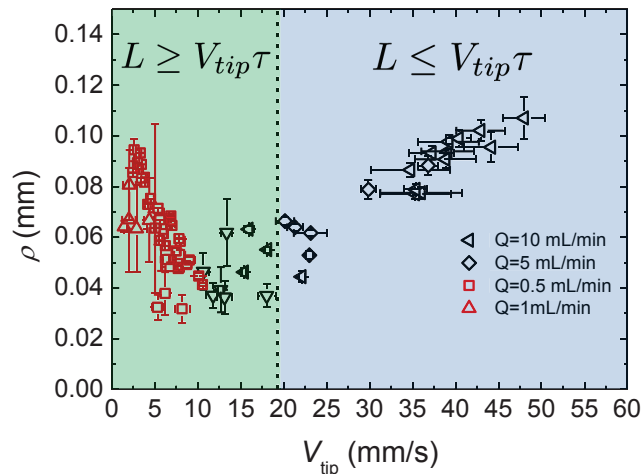


FIGURE 3.24 – Évolution de la courbure en fonction de la vitesse à la pointe de la fracture. Les fractures pour lesquelles la longueur totale est plus grande que  $V_{tip}\tau$  sont dans la partie verte. Les fractures plus courtes que  $V_{tip}\tau$  sont dans la partie bleue.

(3.25(c) et (d)). De plus, si l’on compare deux fractures dont les vitesses de propagation sont situées de part et d’autre de la limite de 20 mm/s, on n’observe aucune différence quantitative entre celles-ci comme le montre les figures 3.25(a) et (b), bien qu’à haute vitesse les fractures apparaissent plus "rugueuses". Le modèle de la trompette viscoélastique ne permet donc pas de décrire nos données.

On remarque toutefois que la cellule de Hele-Shaw ne correspond pas à la géométrie pour laquelle ce modèle a été développé. De plus, à l’exception de la référence [90] où une déviation au comportement parabolique a été quantifié, le changement d’exposant prédit par le modèle n’as pas encore été clairement mesuré expérimentalement.

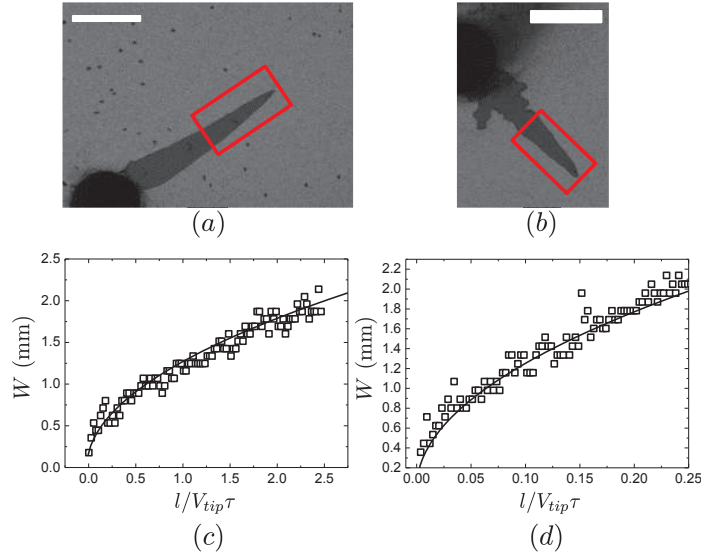


FIGURE 3.25 – Exemples de fracture à différentes vitesses. Les images (a) et (b) correspondent à des fractures qui se propagent à des vitesses respectivement de  $V_{tip} = 4.36$  mm/s (a) et de  $V_{tip} = 35.74$  mm/s (b). La fracture (a) est de longueur  $L = 16$  mm donc dans le régime  $L > V_{tip}\tau$ . La fracture (b) est de longueur  $L = 12$  mm donc dans le régime  $L < V_{tip}\tau$ . Les figures (c) et (d) présentent le profil de fracture pris dans les zones rouges des images (a) et (b) respectivement. Barres 6 mm

### 3.4.2 Interprétation des différentes vitesses caractéristiques

A la section précédente, on a défini deux vitesses caractéristiques. On va maintenant tenter de relier ces vitesses aux paramètres rhéologiques du gel.

#### 3.4.2.1 Vitesse de transition doigt/fracture

Comme précisé au chapitre 1 et au paragraphe 2.1.1, l'échantillon se comporte de manière élastique si on le sollicite sur des temps inférieurs à son temps de relaxation. Il fracture si on lui impose une contrainte suffisamment grande sur des temps suffisamment courts ( i.e. inférieurs à son temps de relaxation). Cela a été vérifié en cisaillement simple [11], et en géométrie élongationnelle [14]. Dans le cadre de nos expériences, on travaille sur une sollicitation mixte avec des composantes de cisaillement et d'élongation. On a considéré deux scénari pour expliquer l'apparition d'une fracture à partir d'un doigt.

#### Définition d'un taux de cisaillement caractéristique.

Nous pouvons définir dimensionnellement un taux de cisaillement caractéristique à partir de la vitesse de propagation  $V_{gel}l^0$  et du gap de la cellule :  $\langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{V_{gel}l^0}{e}$  ou  $e$  est l'épaisseur de la cellule. Le cisaillement critique au-delà duquel le gel fracture a déjà été défini au chapitre 1 par  $\dot{\gamma}_c = 1/\tau$ . Pour  $V_{gel}l^0 = 1.4$  mm/s, on obtient  $\langle \dot{\gamma} \rangle = 2.8$  s<sup>-1</sup> à comparer à la valeur attendue de  $\dot{\gamma}_c = 1.4$  s<sup>-1</sup>. Cette valeur semble comparable avec le taux de cisaillement critique attendu. Néanmoins, on remarque qu'il y a un facteur 2 entre la valeur calculée et celle attendue pour une expérience de cisaillement simple. Ce facteur 2 peut être dû à la façon dont on a calculé le taux de cisaillement. En effet, il ne s'agit ici que d'un calcul dimensionnel donc négligeant d'éventuels préfacteur. Lors de nos expériences, les fractures que nous avons observées se propageait dans le volume de l'échantillon. Si l'on considère qu'avant l'apparition de la fracture, l'écoulement prend la forme d'un écoulement de Poiseuille, alors

le taux de cisaillement va être maximum au niveau des plaques de verres. Si l'apparition des fractures est relié à un taux de cisaillement alors celles-ci devraient apparaître à la surface des plaques. Si tel est le cas, sachant que l'huile utilisé mouille plus le verre que notre gel, alors il n'y aurait aucune raison que le fracture se propage en volume et nous observerions certainement des fractures aux interfaces comme montré au chapitre 2 2.2.3. On en conclut ainsi que ce n'est pas un cisaillement qui est responsable de l'apparition des fractures.

### Définition d'un taux d'élongation caractéristique.

On définit un taux d'élongation caractéristique à la pointe du doigt ou de la fracture à partir de la vitesse du gel à la pointe et du rayon de courbure :  $\dot{\epsilon} = \frac{V_{gel}^0}{\rho}$ . La figure 3.26 montre l'évolution de ce taux d'élongation avec la vitesse de propagation de la fracture. On remarque que le taux d'élongation  $\dot{\epsilon}$  varie linéairement avec la vitesse de propagation  $V_{tip}$ . Pour les doigts, on remarque que le taux d'élongation est toujours inférieur à  $1/\tau$ , le taux d'élongation étant compris entre  $0.04 \text{ s}^{-1}$  et  $0.93 \text{ s}^{-1}$ . Dans le cas de fracture, on observe que ce taux est toujours supérieur à  $1/\tau$ , le taux d'élongation étant compris entre  $9.3 \text{ s}^{-1}$  et  $89 \text{ s}^{-1}$ . La fracture semble donc apparaître pour une valeur définie expérimentalement comme  $\dot{\epsilon}_c = 1/\tau$ .

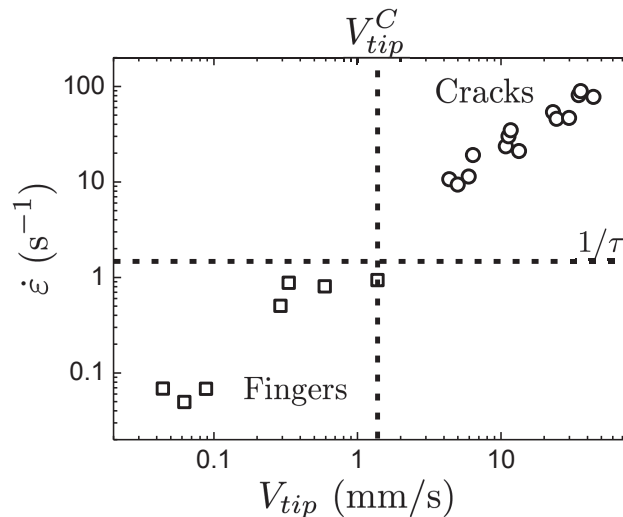


FIGURE 3.26 – Taux d'élongation en fonction de la vitesse de propagation. Les pointillés horizontaux correspondent à la valeur  $\dot{\epsilon} = 1/\tau$ . Ceux verticaux correspondent à la vitesse critique d'apparition des fractures  $V_{tip}^C$ .

Au regard de nos résultats expérimentaux, nous avons pu montrer que  $\dot{\gamma}_c$  et  $\dot{\epsilon}_c$  étaient tous deux proportionnels à  $1/\tau$ . Ces résultats sont en accord avec les mesures effectués en géométrie de cisaillement pour  $\dot{\gamma}_c$  [11], et celles réalisées en géométrie élongationnelle pour  $\dot{\epsilon}_c$  [7] [14]. Néanmoins, la contribution responsable de l'apparition des fractures est le taux d'élongation (une fracture produite par un taux de cisaillement se propagerais en surface et non en volume comme les fractures décrites ici). Nous notons que les doigts sont associés a  $\dot{\epsilon}\tau < 1$  quand les fractures sont décrites par  $\dot{\epsilon}\tau > 1$ . La transition doigt/fracture est ainsi contrôlée par l'existence d'un taux d'élongation critique associé au temps de relaxation du gel.

### 3.4.2 Remarque sur l'existence d'une seconde vitesse critique.

Dans la section 3.3.1, on a montré l'existence de deux types de fracture. Dans le cas des faibles vitesses de propagation, on a remarqué que le gel en pointe de fracture se déplace à des vitesses inférieures à celles requises pour créer une fracture. Tandis qu'à plus grandes vitesses, il est sollicité au-delà de la vitesse critique pour faire apparaître une fracture. On a pu mesurer la vitesse critique de transition entre ces deux régimes :  $V_{tip}^{CC} \simeq 10$  mm/s.

Si on regarde l'évolution du rayon de courbure avec la vitesse de propagation (figure 3.6 de la section 3.2.2), on a identifié un changement du sens de variation dans l'évolution du rayon de courbure  $\rho$  en fonction de la vitesse de propagation de la fracture  $V_{tip}$  pour une vitesse caractéristique :  $V_{tip}^{CC} \approx 10$  mm/s

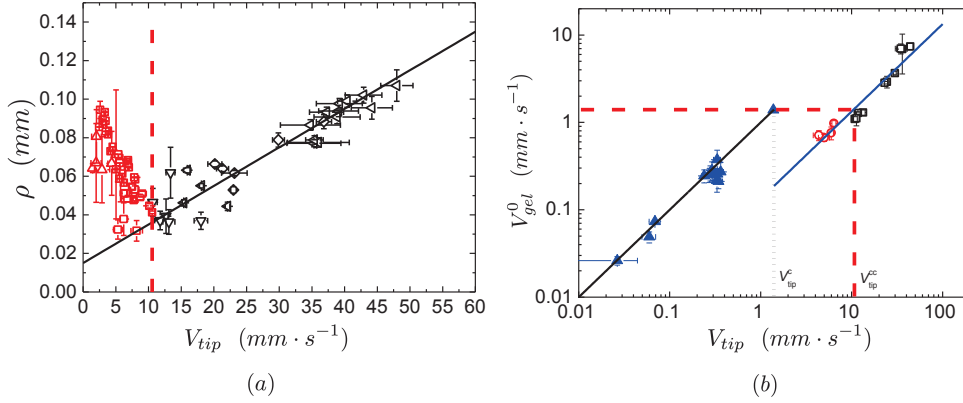


FIGURE 3.27 – Définition de  $V_{tip}^{CC}$ . (a) Comme la vitesse où le rayon de courbure devient minimum. (b) Comme la vitesse où  $V_{gel}^0$  devient plus grand que  $V_{tip}^C$

La figure 3.27 montre les deux mesures décrites ci-dessus. La valeur  $V_{tip}^{CC}$  que nous avons trouvé par ces deux mesures, indépendantes l'une de l'autre, est identique pour les deux mesures. On en déduit que la décroissance du rayon de courbure dans cette gamme de vitesse doit avoir un lien avec le comportement du gel au voisinage de la pointe, bien que cette décroissance du rayon de courbure reste inconnue à ce jour.

### 3.4.3 Modélisation des fractures dans le régime $V_{tip} \geq V_{tip}^{CC}$

#### 3.4.3.1 Rappels de mécanique : lien entre l'énergie de fracture et le rayon de courbure.

On considère ici que le gel se comporte comme un solide Hookéen. Ainsi on peut relier le profil de fracture avec les contraintes qui s'appliquent sur les lèvres de la fracture :

$$u(l) = \frac{K}{E'} \sqrt{\frac{8}{\pi}} \cdot \sqrt{l} \quad (3.3)$$

Où  $E'$  est lié au module élastique et  $K$  est le coefficient de restitution des contraintes.  $E'$  représente l'élasticité effective du gel qui dépend de la géométrie dans laquelle on travaille.

Dans une situation de déformation plane, les déformations s'appliquent dans le plan de la cellule. Dans ces conditions, le terme  $E'$  s'exprime par  $E' = \frac{E}{1-\nu^2}$ , où  $E$  est le module d'Young et  $\nu$  le coefficient de Poisson qui vaut  $\nu = 0.5$  pour un gel supposé incompressible.

Dans une situation de contrainte plane, c'est le champ de contrainte qui s'applique dans le plan de la cellule. Dans ces conditions,  $E' = E$  où  $E$  est le module d'Young du matériau.

Dans le cadre de nos expériences, on va supposer que la contrainte s'applique dans le plan de la

cellule, on va donc se placer dans une situation de contrainte plane.

Le paramètre  $K$  est relié à la façon dont sont appliquées les contraintes sur la fracture. La figure 3.28 présente les trois modes de déformations élémentaires. Les modes  $K_{II}$  et  $K_{III}$  sont des modes de cisaillement. C'est un cisaillement qui provoque la propagation de la fracture. La contrainte s'applique dans le même plan que celui de la propagation de la fracture. Pour  $K_{II}$ , la contrainte s'applique le long de la direction de propagation. Pour  $K_{III}$ , elle s'applique de façon normale à la direction de propagation. Dans le cas d'un mode  $K_I$ , la contrainte s'applique dans un plan normal à celui de propagation de la fracture. L'analyse du profil d'ouverture des fractures, en particulier le préfacteur dans l'expression de l'ouverture, permet ainsi d'avoir des informations sur l'état de contrainte dans le matériau.

Dans notre cas, les composantes liées à un mode III doivent s'appliquer sur la normale au plan de la cellule, c'est-à-dire perpendiculairement aux plaques de verre constituant la cellule. Étant dans un état de contrainte plan, où il n'y a pas de composante de la contrainte dans la direction normale à la direction de propagation, les composantes de mode III ne peuvent pas être observées. Dans le cas où le champ de contrainte est lié à un mode mixte I+II, le plan de propagation de la fracture va tourner dans le but de retrouver une configuration en mode I. Expérimentalement, on a majoritairement observé des fractures qui se propagent de manière rectiligne, cela implique que les fractures peuvent être décrites par un mode I.

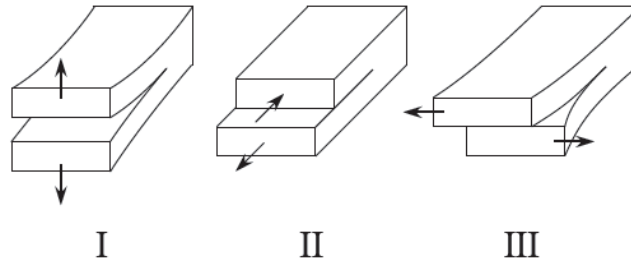


FIGURE 3.28 – Définition des principaux modes de fracturations. Extrait de [91].

A partir du préfacteur  $\frac{K}{E'}\sqrt{\frac{8}{\pi}}$  de l'expression 3.3, on va déduire la relation entre rayon de courbure et énergie de fracture. Dans l'hypothèse d'une fracture élastique, on peut relier l'énergie de fracture  $G$  au coefficient de restitution des contraintes  $K_I$  par la relation suivante :

$$G = \frac{K_I^2}{E} \quad (3.4)$$

On peut ainsi relier le paramètre de la parabole à l'énergie de fracture :

$$2\rho = \frac{8 K_I^2}{\pi E^2} = \frac{8 G}{\pi E} \quad (3.5)$$

Le module d'Young est relié au module de cisaillement  $G_0$  par la relation  $G_0 = \frac{E}{2(1+\nu)}$ . On obtient ainsi :  $G_0 = \frac{E}{3}$ . On arrive finalement à l'expression de l'énergie de fracture :

$$G = \frac{3\pi G_0 \rho}{4} \quad (3.6)$$

Comme précisé à la section 3.2.2, on mesure l'évolution du rayon de courbure avec la vitesse. On se place par la suite dans la situation où on n'observe pas a priori d'effet dissipatif lié au caractère visqueux du gel en pointe de fracture, c'est-à-dire pour  $V_{tip} \geq V_{tip}^{CC}$ . Dans ces conditions, on suppose que le gel se comporte comme un solide Hookéen pour lequel on peut modéliser la dépendance en vitesse de l'énergie de fracture  $G(V_{tip})$ .

### 3.4.3.2 Évolution de l'énergie de fracture avec la vitesse.

La figure 3.29 présente l'évolution de l'énergie de fracture avec la vitesse de propagation. Les données ont été ajustées par une loi linéaire de type :  $G(V_{tip}) = G_s + G_v = G_s + aV_{tip}$ .  $G_s$  est l'énergie de fracture à vitesse nulle,  $G_v$  est un terme dissipatif relié à la vitesse de propagation de la fracture, et  $a$  est un paramètre d'ajustement qui va relié au mécanisme de dissipation d'énergie.

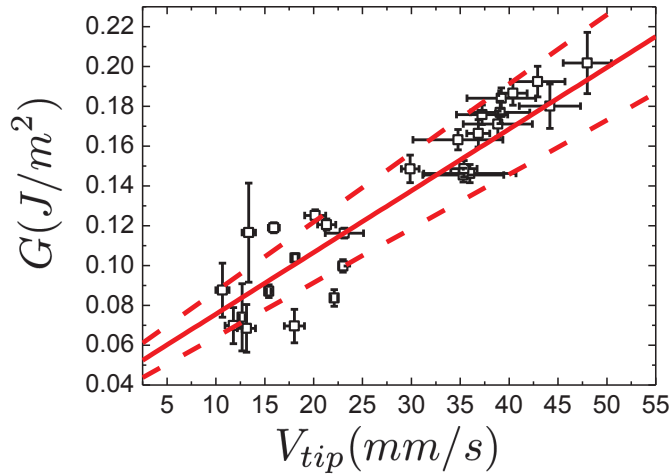


FIGURE 3.29 – Énergie de fracture en fonction de la vitesse de propagation. La ligne rouge en trait plein représente l'ajustement linéaire, celles en pointillées représentent la déviation standard à cet ajustement.

On mesure  $G_s = (45 \pm 12) \text{ mJ/m}^2$ . On a par ailleurs mesuré la tension interfaciale entre l'huile et la microémulsion nue par une méthode de profilométrie sur une goutte pendante. On trouve  $\gamma_{huile/m} = 30 \text{ mJ/m}^2$ . On a ainsi :

$$G_s \sim 2\gamma_{huile/m}$$

En supposant que l'ajout du polymère téléchélique ne modifie pas de façon importante la tension interfaciale entre l'huile et la microémulsion. L'énergie nécessaire à l'apparition d'une fracture est ainsi l'énergie dont on a besoin pour créer deux interfaces huile/microémulsion.

On mesure  $a = (7.35 \pm 0.191) \text{ Pas}$ . Ce terme est relié au mécanisme de dissipation visqueuse en pointe de fracture que l'on va modéliser dans le paragraphe suivant.

### 3.4.3.3 Modélisation de l'énergie de fracture

Une évolution linéaire de l'énergie de fracture avec la vitesse de propagation de la fracture a déjà été observée dans des gels de biopolymères (gélatine) par Baumberger et al. [92] [93] . Dans la section suivante, nous présenterons ce modèle et l'appliquerons à nos données. On présentera également un modèle que nous avons développé afin de pouvoir extraire une taille caractéristique associée aux réorganisations du matériau à la pointe de fracture.

#### Cas de la gélatine.

La gélatine est formée par un réseau de collagène. Le collagène est constitué de chaînes de polymères organisées en triple hélices. On a donc un réseau constitué de morceaux de triples hélices

reliées entre elles par des morceaux de chaînes très flexibles comme le montre la figure 3.30.

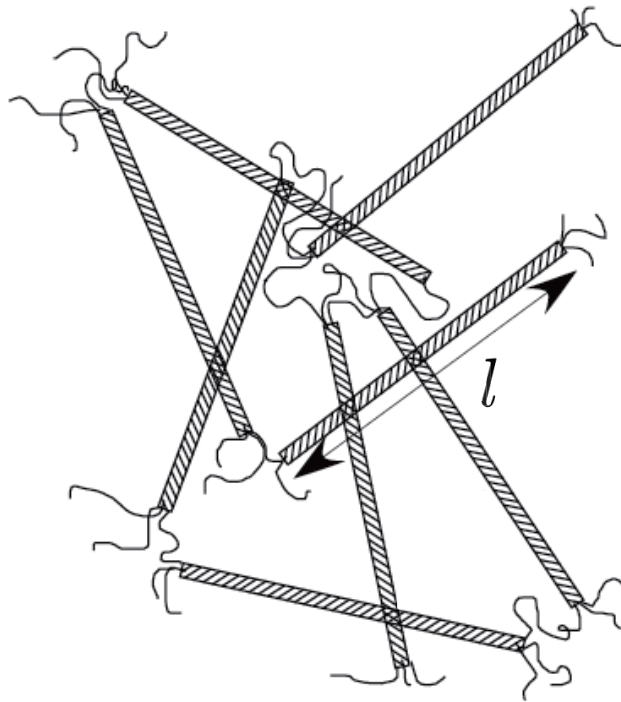


FIGURE 3.30 – Représentation schématique de la structure d’un gel de gélatine.  $l_c$  correspond à la longueur d’une triple-hélice. Extraite de [91]

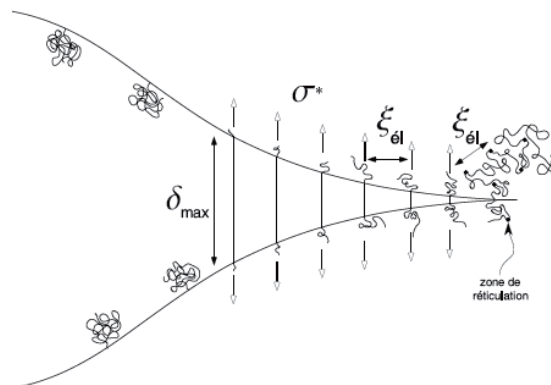


FIGURE 3.31 – Représentation schématique de la tête de fracture. Extrait de [91]

L’énergie de fracture a été modélisée par une loi de la forme :  $G(V_{tip}) = G_s + G_v$  avec  $G_{V_{tip}} = \Gamma \eta_s V_{tip}$  où  $\Gamma$  est un paramètre ajustable,  $\eta_s$  la viscosité du solvant, et  $V_{tip}$  la vitesse de propagation de la fracture. On va ici discuter le terme  $\Gamma$ . Le schéma 3.31 montre la pointe d’une fracture. On définit  $\xi_{el}$  comme une taille caractéristique du réseau et  $\delta_{max}$  comme l’allongement maximal d’une chaîne à

la pointe de fracture. La fracture avance en arrachant des polymères des points de réticulation, il en résulte une contrainte visqueuse  $\sigma_v$  due aux frottements des chaînes extraites dans le solvant. On va considérer ces chaînes comme des cylindres de longueur  $l_c$  (qui correspond à la longueur des triple hélices, figure 3.30) et de diamètre  $\xi_{el}$ . La contrainte visqueuse peut s'écrire sous la forme :

$$\sigma_v \approx \frac{f_v}{\xi_{el}^2} \quad (3.7)$$

Le terme  $f_v$  de l'équation 3.7 correspond à la force de frottement visqueuse ressentie par les chaînes qui peut s'exprimer sous la forme  $f_v \approx \alpha_g \eta_s l_c V_{tip}$ .  $\alpha_g V$  est défini comme la vitesse d'extraction des chaînes de polymères des points de réticulation.  $\alpha_g$  est un paramètre géométrique lié à la forme de la pointe de fracture que l'on posera égal à :  $\alpha_g \approx \frac{l_c}{\mathcal{L}}$  où  $\mathcal{L}$  est la taille de la zone de cohésion en amont de la fracture. La zone de cohésion est définie comme la zone autour de la pointe de la fracture dans laquelle va se produire l'essentiel des phénomènes de dissipation, dans le schéma 3.31 elle correspond à la zone où les chaînes sont étirées. L'équation 3.7 se réécrit alors :

$$\sigma_v \approx \alpha_g \frac{l_c}{\xi_{el}^2} \eta_s V_{tip} \quad (3.8)$$

Ce qui nous permet d'estimer l'énergie dissipée lors de l'extrusion d'une chaîne :

$$G_v \approx \sigma_v l_c \approx \alpha_g \left(\frac{l_c}{\xi_{el}}\right)^2 \eta_s V_{tip} \quad (3.9)$$

Dans le cas d'un gel de gélatine la longueur  $l$  est de l'ordre du micron. Le paramètre  $\xi_{el}$  peut être calculé à partir du module élastique du gel :  $G_0 \approx \frac{k_b T}{\xi_{el}^3}$ . On en déduit que  $\xi_{el} \approx 10$  nm. A partir de ces paramètres, on peut calculer la valeur de  $\Gamma$

$$\Gamma \approx \alpha_g \left(\frac{l_c}{\xi_{el}}\right)^2 \approx 10^4 \alpha_g \quad (3.10)$$

Expérimentalement Baumberger et al. [91] ont mesuré  $\Gamma = 10^6$ . Cela implique que le paramètre  $\alpha_g = 10^2$ , ce qui donne une zone de cohésion de taille  $\mathcal{L} = 10$  nm soit  $\mathcal{L} \approx \xi_{el}$ .

### Application du modèle dans le cas de microémulsions connectée

Nous allons tenter d'utiliser ce même modèle pour décrire nos données. On a mesuré un terme de dissipation visqueuse :  $G_v = a V_{tip} = \Gamma \eta_s V_{tip}$ . Donc la valeur de  $\Gamma$  expérimentale est :  $\Gamma = \frac{a}{\eta_s} = 7350 \pm 191$ . On va estimer les différents termes de l'équation 3.9.

#### Estimation de $\alpha_g$ .

Le modèle de Dugdale permet de relier le paramètre géométrique d'ouverture avec la contrainte nécessaire pour ouvrir la fracture :

$$\alpha_g \sim \frac{l_c}{\mathcal{L}} \sim \frac{\sigma^*}{E} \quad (3.11)$$

Où  $l$  est la longueur d'un polymère téléchélique complètement étirée.  $E$ , le module d'Young, est relié au module élastique par la relation  $G_0 = \frac{E}{3}$ .  $\mathcal{L}$  est la taille d'une zone de cohésion que l'on va tenter d'estimer. La contrainte  $\sigma^*$  est la contrainte qu'il faut appliquer sur la microémulsion connectée pour pouvoir arracher un sticker d'une gouttelette. L'énergie nécessaire pour arracher un sticker d'une gouttelette, par unité de surface, est estimée à  $\gamma_{pol} = 10$   $\mu\text{N/m}$  [14]. On peut alors définir la force nécessaire pour arracher un sticker comme :  $f^* = \gamma_{pol} l_{sticker}$ , où  $l_{sticker}$  est la longueur d'un sticker. On travaille avec des stickers à 18 carbones, la distance moyenne d'une liaison C-C étant  $l_{C-C} = 0.154$  nm [94], on peut estimer :  $l_{sticker} \sim 18 l_{C-C} \sim 2.772$  nm. Ainsi on peut déterminer la contrainte :



$$\sigma^* = \frac{f^*}{\xi_{el}^2} = \frac{\gamma_{pol} l_{sticker}}{\xi_{el}^2} \sim 140 \text{ Pa}$$

Dans l'expression ci-dessus, on a estimé  $\xi_{el}$  à partir du module élastique  $G_0 \sim \frac{k_b T}{\xi_{el}^3}$ . Ainsi, on obtient  $\xi_{el} = 13.7 \text{ nm}$ . On peut ainsi déterminer le paramètre  $\alpha_g$

$$\alpha_g \sim \frac{140}{4800} = 3 \cdot 10^{-2} \quad (3.12)$$

Estimation de  $l_c$ .

$l_c$  représente la longueur de la chaîne totalement étirée. Commençons par estimer la taille d'un monomère de PEO. Le monomère est constitué d'une liaison C-C (de taille 0.154 nm [94]) et d'une liaison C-O (de taille 0.143 nm [94]). Ainsi la taille d'un monomère peut être estimée à 0.3 nm.

La masse molaire d'un monomère est de 44 g/mol. On a environ 227 monomères sur la chaîne de PEO. On estime la longueur de la chaîne étirée :  $l_c = 227 \times 0.3 \approx 68 \text{ nm}$ .

Connaissant  $l, \alpha_g$  et  $\xi_{el}$ , on peut ainsi estimer la valeur de  $\Gamma$  via la relation :

$$\Gamma \sim \alpha_g \left( \frac{l_c}{\xi} \right)^2 \sim 0.5$$

Cette valeur est plus petite que celle mesurée expérimentalement de 4 ordres de grandeur. On peut vérifier l'ordre de grandeur de la zone cohésive dans l'hypothèse où le modèle s'appliquerait. On peut ainsi définir le paramètre  $\alpha_g$  à partir de l'équation 3.10 avec  $\Gamma = 7350$ . En reliant l'équation 3.10 à l'équation 3.11, on peut estimer la taille de la zone de cohésion :

$$\mathcal{L} \sim \frac{l_c}{\alpha_g} \sim 0.227 \text{ nm} \quad (3.13)$$

La zone de cohésion serait ainsi légèrement inférieure à la taille d'un monomère de PEO, ce qui n'est pas cohérent. On s'attend à ce que cette zone soit au moins de taille d'une chaîne. Il semble donc que le modèle de Baumberger et al ne s'applique pas à notre système expérimental.

### **Estimation de la taille de la zone de process en fonction de l'énergie de fracture**

Dans le modèle proposé par Tabuteau et al. [14], le mécanisme pour faire avancer la fracture est la rupture d'une liaison goutte-goutte par détachement du polymère. Quand un lien est rompu, l'énergie stockée par le lien est relâchée, provoquant l'élongation du lien suivant qui, à son tour, va pouvoir rompre. La fracture va donc se propager de proche en proche comme l'ouverture d'une fracture élastique. On peut définir une vitesse « naturelle » d'avancée de la fracture (telle que l'on a pu le voir au chapitre 1) :

$$V_{nat} \lesssim 0.25 \frac{E d_0^2}{6\pi\eta_s R_{goutte}}. \quad (3.14)$$

$d_0$  correspond à la distance moyenne entre gouttes,  $R_{goutte}$  est le rayon des gouttelettes de microémulsion. Pour ce gel,  $V_{nat} \sim 4 \text{ mm/s}$

Dans notre cas, le débit est fixé, et on ne contrôle pas la vitesse des fractures qui se propagent à des vitesses variables comprises entre 1.4 mm/s et 50 mm/s. On injecte continuellement de l'huile pour ouvrir les fractures ce qui "force", par conservation du volume, la fracture à se propager à des vitesses supérieures à  $V_{nat}$ . Cela implique que l'on ne va plus solliciter les liens les uns après les autres (dans ce cas, la fracture se propagerait à une vitesse égale à  $V_{nat}$ ) mais par blocs de liens. La fracture avance donc en sollicitant des groupes de liens les uns après les autres.

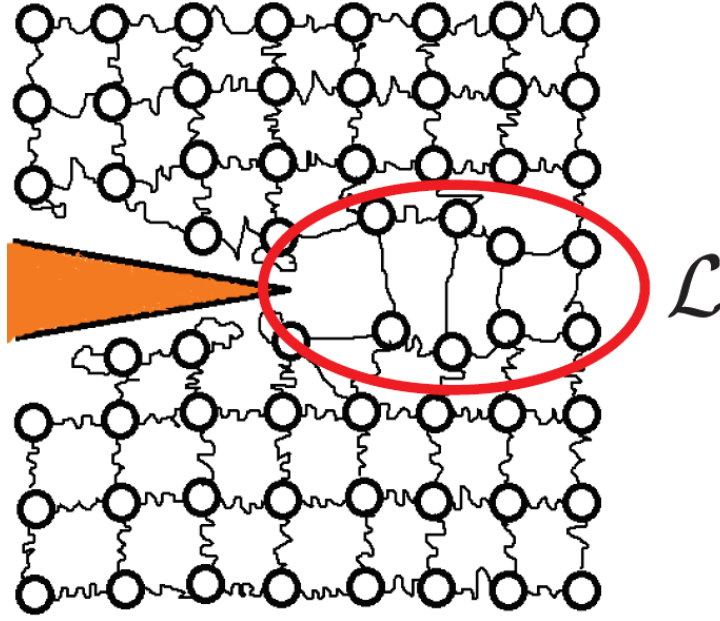


FIGURE 3.32 – Représentation schématique du mécanisme d'avancée de la fracture. Une zone de taille  $\mathcal{L}$ , subit une élévation jusqu'à ce que les liens dans cette zone atteignent leur élévation critique.

Les chaînes vont être étirées jusqu'à atteindre une élévation critique  $\delta_{max}$ . Cette élévation est reliée à l'énergie d'adhésion d'un sticker qui dépend du nombre de monomères  $N$ , de la taille d'un monomère  $a_m$  et de la température.

$$E_{adh} = \frac{1}{2} \frac{k_b T}{N a_m^2} \delta_{max}^2 \sim 18 k_b T \quad (3.15)$$

Les chaînes sont étirées sur une zone de taille  $\mathcal{L}$  en avant de la fracture. Cette zone possède une densité de gouttelettes  $(\frac{\mathcal{L}}{d_0})^3$ . On connaît la connectivité effective  $N_s$  du réseau, néanmoins on va supposer que seule la moitié des polymères forment une configuration ponts (c'est-à-dire pontent deux gouttelettes entre elles, comme explicité dans la référence [95]). Ainsi, on peut estimer l'énergie totale dissipée dans la zone  $\mathcal{L}$  :

$$E \sim \frac{N_s}{4} E_{adh} \left(\frac{\mathcal{L}}{d_0}\right)^3 \quad (3.16)$$

L'énergie dissipée par unité de surface  $G_v$  est donc :

$$G_v = E \cdot \mathcal{L}^2 \approx \frac{N_s}{4} E_{adh} \frac{\mathcal{L}}{d_0^3} \quad (3.17)$$

En égalant cette expression à la valeur de la dissipation expérimentale  $aV_{tip}$ , on peut exprimer la taille de la zone sur laquelle les liens sont sollicités :

$$\mathcal{L} \sim \frac{4d_0^3}{N_s \cdot E_{adh}} aV_{tip} \quad (3.18)$$

On remarque par construction que la taille de la zone caractéristique de sollicitation dépend linéairement de la vitesse de propagation. Pour les fractures les plus lentes, la zone de sollicitation est de l'ordre du  $\mu\text{m}$ . Pour les fractures les plus rapides, on va atteindre des tailles de l'ordre de la dizaine de  $\mu\text{m}$  comme le montre la figure 3.33.

Cette zone de process reste néanmoins trop petite pour être observable expérimentalement. Pour pouvoir conclure sur la validité de cette modélisation, il faudrait créer un montage miniaturisé pouvant se fixer sur la platine d'un microscope qui nous permettrait de pouvoir explorer les zones très

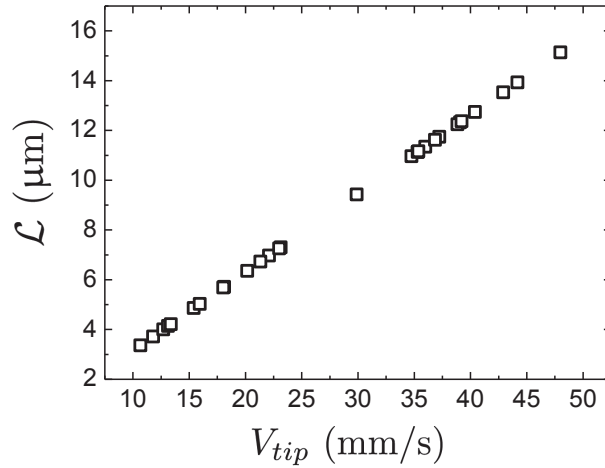


FIGURE 3.33 – Estimation de la taille de la zone caractéristique calculé a partir de la relation 3.18

proche de la pointe de fracture. Néanmoins, les ordres de grandeurs suggérés par cette modélisation ne paraissent pas être incohérent. Si on estime  $\mathcal{L}$  en terme de nombre de liens, on trouve que les fractures sollicitent des zones comprises entre 100 et 1000 liens. Ce qui reste plus cohérent que l'analyse que l'on avait réalisé au paragraphe 3.4.3.3

### 3.4.4 Modélisation des champs de déplacement

Au paragraphe 3.3.2.3, on a pu montrer un comportement unique des déplacements dans la direction de propagation,  $d_{||}$ , et dans la direction normale à la direction de propagation,  $d_{\perp}$ . Dans ce paragraphe, on va proposer un modèle décrivant les données expérimentales. On comparera ensuite ce modèle au champ de déplacement théorique calculé à l'aide de la théorie linéaire élastique qui décrit le comportement d'une fracture dans un solide élastique parfait.

#### 3.4.4.1 Détermination d'une forme analytique du champ de déplacement autour d'une fracture

On suppose que le champ de déplacement peut être décrit comme un produit de deux fonctions, l'une nous donnant la dépendance avec la distance à la pointe de fracture, et la seconde nous donnant l'évolution angulaire du champ :

$$d_{i,\perp}(r, \theta) = f(r)g(\theta) \quad (3.19)$$

La dépendance avec la distance a été déterminée lorsque l'on a réalisé une courbe maîtresse des champs des déplacements au paragraphe 3.3.2.4. On posera donc  $f(r) \approx 1/\sqrt{r}$ . Il reste donc le terme  $g(\theta)$  à déterminer. On va proposer une forme de  $g(\theta)$  qui respecte les symétries du système :

Le déplacement  $d_{||}$  est maximum en  $\theta = 0^\circ$  (la direction de propagation) et décroît, symétriquement avec  $\theta$ , jusqu'à s'annuler sur l'interface gel/huile. Le déplacement  $d_{\perp}$ , lui, va être nul en  $\theta = 0^\circ$  puis croître, symétriquement avec  $\theta$ , jusqu'à être maximal proche de l'interface gel/huile. Ces variations peuvent correspondre à des fonctions sinusoïdales "étirées" pour que le minima de  $d_{||}$  (respectivement le maxima de  $d_{\perp}$ ) corresponde avec la position angulaire de l'interface. Le champ de déplacement peut ainsi être décrit par :

$$d_{||}^{EXP}(r, \theta) \approx \frac{1}{\sqrt{r}} \cos(\kappa\theta) \quad (3.20)$$

$$d_{\perp}^{EXP}(r, \theta) \approx \frac{1}{\sqrt{r}} \sin(\kappa\theta) \quad (3.21)$$

Le gel étant incompressible, le champ de déplacement du gel doit vérifier l'hypothèse d'incompressibilité  $\nabla \cdot \vec{\mathbf{V}} = \nabla \cdot \frac{\Delta \vec{\mathbf{D}}}{\delta t} = 0$  où  $\vec{\mathbf{V}}$  représente le champ de vitesse du gel et  $\Delta \vec{\mathbf{D}}$  le champ des déplacements du gel. On va calculer pour quelle valeur de  $\kappa$  cette hypothèse est vérifiée. Les composantes  $d_{||}^{EXP}$  et  $d_{\perp}^{EXP}$  étant des fonctions de  $r$  et de  $\theta$ , on va calculer la divergence en coordonnées cylindriques.

On pose donc :

$$d_r = d_{||}^{EXP} \cos \theta + d_{\perp}^{EXP} \sin \theta \quad (3.22)$$

$$d_{\theta} = d_{\perp}^{EXP} \cos \theta - d_{||}^{EXP} \sin \theta \quad (3.23)$$

En injectant les relations 3.22 et 3.23 dans l'expression de la divergence :

$$\nabla \cdot \vec{\mathbf{d}} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(rd_r) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}(d_{\theta}) \quad (3.24)$$

Où  $\vec{\mathbf{d}}$  est le champ de déplacement en coordonnées polaires, on trouve finalement :

$$\kappa = 1/2. \quad (3.25)$$

On peut donc déterminer un champ qui respecte à la fois la symétrie de nos données, et l'incompressibilité du gel, à un préfacteur près :

$$d_{||} \approx \frac{1}{\sqrt{r}} \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (3.26)$$

$$d_{\perp} \approx \frac{1}{\sqrt{r}} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (3.27)$$

Les figures 3.34(a) à (d) nous montrent le résultat d'un ajustement du préfacteur commun des équations 3.26 et 3.27, qui est l'unique paramètre ajustable du modèle, des données par ce champ pour différentes distances à la pointe de fracture, respectivement de 1.8 mm (figures 3.34(a) et (c)) et 4.5 mm (figures 3.34(b) et (d)), et à différentes vitesses, respectivement de 6.38 mm/s (figures 3.34(a) et (b)) et 34.76 mm/s (figures 3.34(c) et (d)). On peut remarquer que l'ajustement des courbes par les équations 3.26 et 3.27 est très bon. On va maintenant comparer ce champ à celui attendu dans le cas d'un matériau purement élastique.

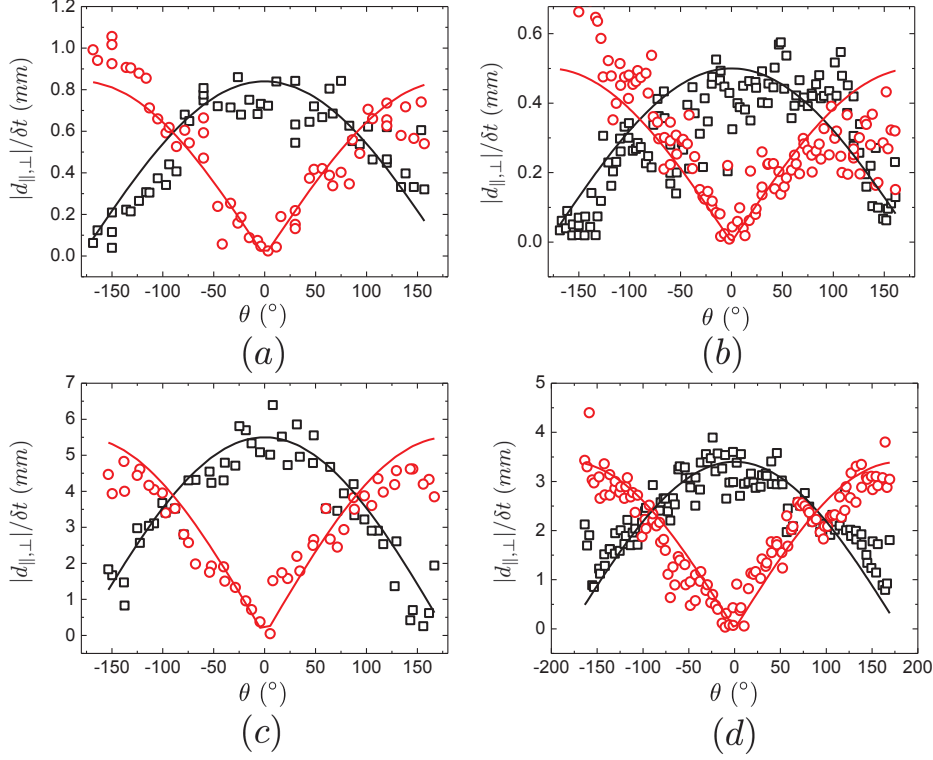


FIGURE 3.34 –  $|d_{||}|/\delta t$  (points noirs) et  $|d_{\perp}|/\delta t$  (points rouges) ajustés par les relations 3.26 (ligne noire) et 3.27 (ligne rouge) pour différentes distances à la pointe  $r$  et différentes vitesses de propagation  $V_{tip}$ . (a) et (b) correspondent aux champs d'une fracture se propageant à  $V_{tip} = 6.38$  mm/s pris pour : (a)  $r = 1.8$  mm, (b)  $r = 4.5$  mm. (c) et (d) correspondent aux champs d'une fracture se propageant à  $V_{tip} = 34.76$  mm/s pris pour : (c)  $r = 1.8$  mm, (d)  $r = 4.5$  mm

### 3.4.4.2 Champ de déplacement issu de la théorie linéaire élastique

Comme précisé dans le paragraphe 3.4.3.1, on se place dans l'hypothèse d'une fracture pouvant être décrite par un mode I. Dans ces conditions, le déplacement total, calculé dans un repère local  $(\vec{u}_r, \vec{u}_\theta)$  s'exprime :

$$u_r(r, \theta) = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos \frac{\theta}{2} (2 - \cos \theta) \quad (3.28)$$

$$u_\theta(r, \theta) = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \sin \frac{\theta}{2} (2 - \cos \theta) \quad (3.29)$$

On a choisi ici de travailler dans un repère cartésien défini par la direction de propagation et la normale à cette direction, avec pour origine la pointe de fracture (figure 3.35). Dans ce repère le champ de déplacement élastique s'exprime :

$$d_{1x} = u_r \cos \theta - u_\theta \sin \theta = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos \frac{3\theta}{2} (2 - \cos \theta) \quad (3.30)$$

$$d_{1y} = u_r \sin \theta + u_\theta \cos \theta = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \sin \frac{3\theta}{2} (2 - \cos \theta) \quad (3.31)$$

Où  $d_{1x}$  et  $d_{1y}$  sont les composantes du champ de déplacement à l'instant  $t$  dans le repère associé à la direction de propagation. Le champ mesuré expérimentalement correspond aux déplacements effectués entre l'instant  $t$  et l'instant  $t + \delta t$ . Entre ces deux instants, la fracture s'est propagée d'une

longueur  $\delta_{crack} = V_{tip}\delta t$ . On peut donc définir de la même façon que pour les équations 3.30 et 3.31 un champ associé à l'instant  $t + \delta t$  :

$$d_{2x} = u_{r_2} \cos \theta_2 - u_{\theta_2} \sin \theta_2 = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{r_2}{2\pi}} \cos \frac{3\theta_2}{2} (2 - \cos \theta_1) \quad (3.32)$$

$$d_{2y} = u_{r_2} \sin \theta_2 + u_{\theta_2} \cos \theta_2 = \frac{K_I}{E} \sqrt{\frac{r_2}{2\pi}} \sin \frac{3\theta_2}{2} (2 - \cos \theta_2) \quad (3.33)$$

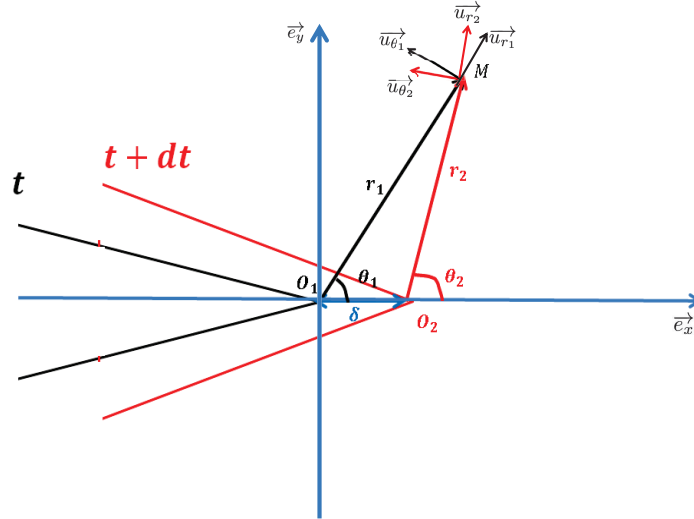


FIGURE 3.35 – Définition des grandeurs associées à la fracture aux instants  $t$  et  $t + \delta t$

La figure 3.35 présente les différentes grandeurs associées au champ de déplacement aux instants  $t$  et  $t + \delta t$ . Si l'on considère un point M quelconque de coordonnées  $(x, y)$ , on peut écrire  $r_1 = \sqrt{x^2 + y^2}$  et  $\tan \theta_1 = \frac{y}{x}$ . Comme l'indique la figure 3.35, entre les instants  $t$  et  $t + \delta t$  la fracture a avancé, ce qui revient à transformer les coordonnées du point M :  $(x, y) \rightarrow (x - \delta_{crack}, y)$ . Connaissant  $r, \theta$ , et  $\delta_{crack}$  (que l'on définit par le déplacement de la pointe entre  $t$  et  $t + \delta t$ ), on peut ainsi calculer  $r_2$  et  $\theta_2$  :

$$r_2 = \sqrt{(x - \delta_{crack})^2 + y^2} \quad (3.34)$$

$$\theta_2 = \arctan\left(\frac{y}{x - \delta_{crack}}\right) \quad (3.35)$$

Le déplacement entre l'instant  $t + \delta t$  et l'instant  $t$  est alors la différence entre le champ de déplacement calculé à l'instant  $t + \delta t$  et celui à l'instant  $t$  :

$$d_{||}^{theo} = \frac{K_I}{E\sqrt{2\pi}} (\sqrt{r_2}(2 - \cos \theta_2) \cos \frac{3\theta_2}{2} - \sqrt{r}(2 - \cos \theta) \cos \frac{3\theta}{2}) \quad (3.36)$$

$$d_{\perp}^{theo} = \frac{K_I}{E\sqrt{2\pi}} (\sqrt{r_2}(2 - \cos \theta_2) \sin \frac{3\theta_2}{2} - \sqrt{r}(2 - \cos \theta) \sin \frac{3\theta}{2}) \quad (3.37)$$

La figure 3.36 montre une représentation de ce champ prise pour une distance à la pointe  $r_1 = 4.45$  mm et avec  $K_I = 1250$ .

On va maintenant comparer ces résultats aux champs de déplacements expérimentaux.

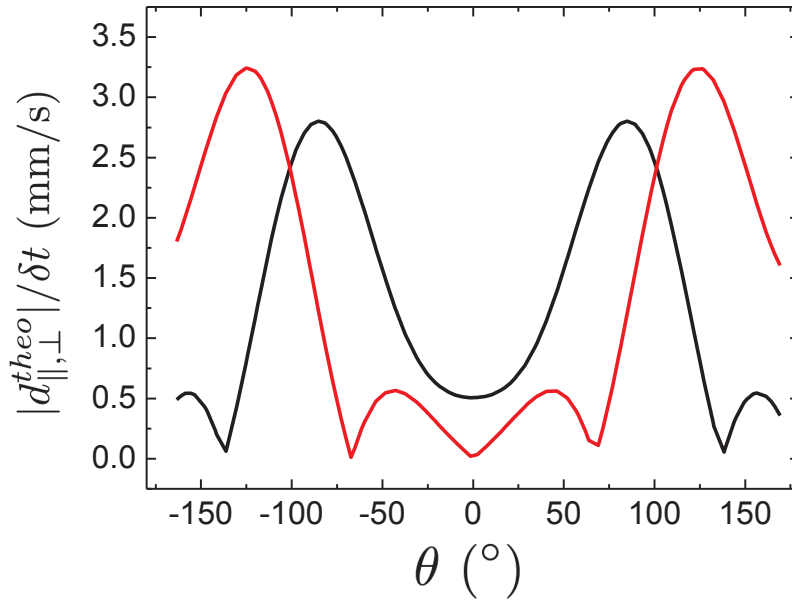


FIGURE 3.36 – Champs des déplacements  $d_{||}^{theo}$  et  $d_{\perp}^{theo}$  en fonction de  $\theta$  calculés à l'aide des expressions 3.36 et 3.37

### 3.4.4.3 Comparaison entre le champ calculé expérimentalement et le champ issu de la théorie de la fracture linéaire élastique.

Pour chaque fracture, on peut calculer la valeur du coefficient  $K_I$  à l'aide de son rayon de courbure via la relation 3.3. On peut ainsi calculer, pour chaque fracture considérée, le champ issu de la théorie de la fracture linéaire élastique. La figure 3.37 montre le champ théorique tel que calculé avec les relations 3.36 et 3.37, superposés aux données expérimentales d'une fracture se propageant à une vitesse  $V_{tip} = 34.75$  mm/s à une distance 4.45 mm de la pointe de fracture.

On remarque que les deux courbes sont très différentes : les équations 3.36 et 3.37 ne décrivent pas de façon correcte les champs observés expérimentalement. On peut également comparer le modèle empirique discuté au paragraphe 3.4.4.1 avec celui théorique du paragraphe 3.4.4.2 (figure 3.38)

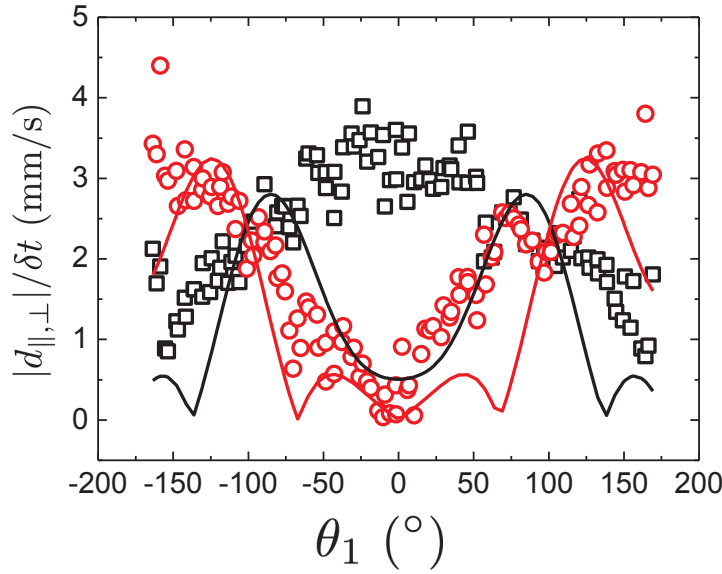


FIGURE 3.37 – Champs de déplacement  $d_{||}$  ( $\square$  noir) et  $d_{\perp}$  ( $\circ$  rouge) d’une fracture se propageant à  $V_{tip} = 34.75$  mm/s à  $r_1 = 4.45$  mm. Les lignes représentent les champs attendus à partir des équations 3.36 (ligne noire) et 3.37 (ligne rouge)

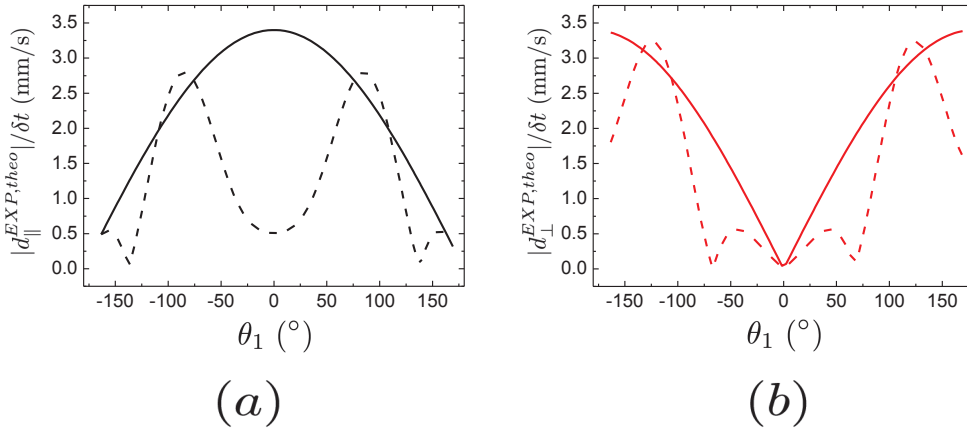


FIGURE 3.38 – Comparaison entre le champ empirique déterminé à partir des symétries du champ et le champ issu de la théorie de la fracture linéaire élastique. (a)  $d_{||}$ , (b)  $d_{\perp}$ .

Les deux champs présentent de grandes différences. Pour  $d_{||}$ , le champ élastique présente un minimum en  $\theta = 0^\circ$ , alors qu’il est maximum dans le cas du champ déterminé expérimentalement. De plus, sur l’intervalle  $[-90^\circ, 90^\circ]$ , les deux champs ont des sens de variations différents. Pour  $\theta > 90^\circ$  (respectivement  $\theta < -90^\circ$ ), les deux champs sont du même ordre de grandeur, bien qu’il ne se superposent pas. Pour  $d_{\perp}$ , les deux champs s’annulent en  $\theta = 0^\circ$ , mais le champ expérimental croît bien plus vite que le champ théorique sur l’intervalle  $[-90^\circ, 90^\circ]$ . A  $\theta = 90^\circ$  (respectivement  $\theta_1 = -90^\circ$ ), le champ théorique s’annule avant de se mettre à augmenter de façon importante pour



devenir maximal en  $\theta_1 = 125^\circ$  (respectivement  $\theta_1 = -125^\circ$ ).

En conclusion, les champs déterminés expérimentalement ne sont pas compatibles avec le champ associé à la théorie de la fracture linéaire élastique. Cette théorie est donc insuffisante pour décrire la fracture dans notre gel. Néanmoins, plusieurs aspects tendent à prouver le caractère élastique des champs de déplacements observés. Tout d'abord, nous avons pu montrer que la dépendance avec la distance à la pointe du champ était celle que l'on attendait d'un champ élastique. De plus, le champ calculé à l'aide de la théorie linéaire élastique donne des ordres de grandeur des déplacements similaire à ceux observés expérimentalement, au moins proches de l'interface huile/gel. La différence principale entre le champ théorique et expérimentale se situe dans la modélisation des déplacements autour de la direction de propagation de la fracture. Dans le modèle issu de la théorie linéaire élastique, les déplacements le long de la direction de propagation sont très faibles ce qui ne correspond pas à ce qui est observé expérimentalement.

Dans le modèle linéaire élastique, nous avons supposé que les fractures s'ouvraient en mode I. Cela signifie que les contraintes étaient appliquées uniquement dans la direction normale à la direction de propagation. Néanmoins, dans notre cas, en plus de l'ouverture, nous sommes en train d'injecter de l'huile à débit constant. Le mode de chargement de la fracture pourrait être alors plus complexe que celui modélisé par la théorie linéaire élastique. Un modèle plus complexe pourrait alors être capable de décrire les comportements observés expérimentalement.

## Résumé

A travers ce chapitre nous avons défini, à l'aide de critères quantitatifs les différents motifs que l'on observe en fonction du débit d'injection. Nous avons pu étudier quantitativement la transition entre une instabilité de type Saffman-Taylor et une instabilité de type fractures. Nous avons ainsi montré qu'une discontinuité des vitesses à la pointe de l'interface huile/gel apparaissait quand le gel fracture. Deux types de fractures ont de plus été identifiées : Des fractures élastique où toutes les vitesses caractéristiques de la pointe de fracture sont supérieures à son seuil de fracturation, et des fractures où le gel au voisinage de la pointe de fracture est suffisamment lent pour être en dessous de son seuil de fracturation. Par analyse du rayon de courbure nous avons, pour les fractures élastiques, pu calculer une énergie de fracture qui nous a permis d'évaluer la taille de la zone de process en pointe de fracture. En étudiant les champs des déplacements, nous avons pu réaliser une courbe maitresse permettant de montrer que la forme du champ est identique quel que soit la vitesse de propagation de la fracture et la distance à la pointe. Cette courbe maitresse nous a permis de montrer que la dépendance avec la distance à la pointe des champs était celle attendue pour un solide élastique. Néanmoins, la forme des champs des déplacements ne peut pas être décrite par la théorie de la fracture linéaire élastique et des modèles de fracture élastique plus complexes doivent être envisagés pour décrire les fractures observées dans nos gels.

## Chapitre 4

# Digitation et fracture dans les micelles pontées à morphologie variable

Au chapitre 3, nous avons caractérisé la transition doigt/fracture ainsi que la propagation de fractures dans une microémulsion connectée. Nous allons maintenant étendre cette étude à un système de micelles pontées à morphologie variable. La morphologie des gels est contrôlée par le rapport  $R_{surf}$  entre la quantité de matière de tensioactif et de cotensioactif comme mentionné au chapitre 2. La figure 4.1(a) présente un motif typique observé lors d'une expérience pour des solutions de micelles pontées enchevêtrées. Ce motif est très différent de celui observé avec une microémulsion connectée dans les mêmes conditions (figure 4.1(b)).

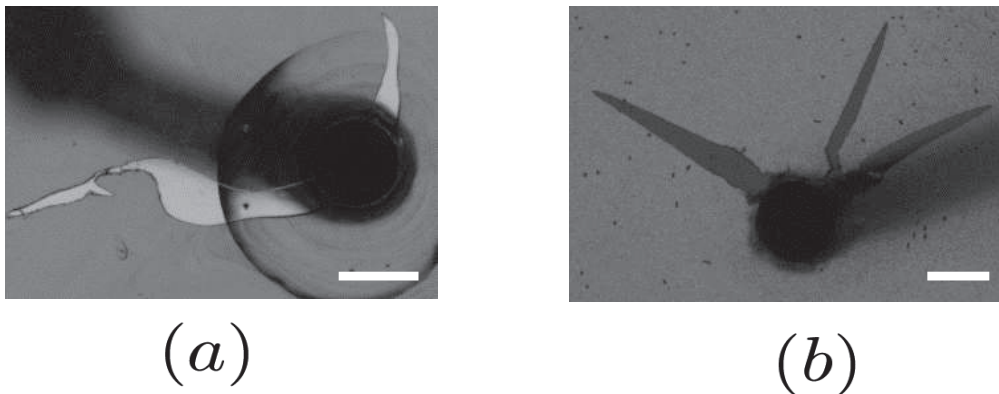


FIGURE 4.1 – Motifs observés lors d'une expérience de fracturation. (a) Pour une solution de micelles pontées de composition  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.4$  à un débit de  $Q_v = 0.3$  mL/min. (b) Pour une microémulsion connectée de composition  $\Phi = 10\%$ ,  $N_s = 10$  à un débit  $Q_v = 2$  mL/min. Barre 6 mm.

Alors que dans le cas des microémulsions connectées la forme des fractures change peu au cours de la propagation, dans le cas de micelles pontées, au fur et à mesure de la propagation, un changement de forme de la fracture est observé (figure 4.2). Nous verrons au chapitre 5 que l'existence d'un comportement particulier sous écoulement peut expliquer ces effets de déformations des fractures.

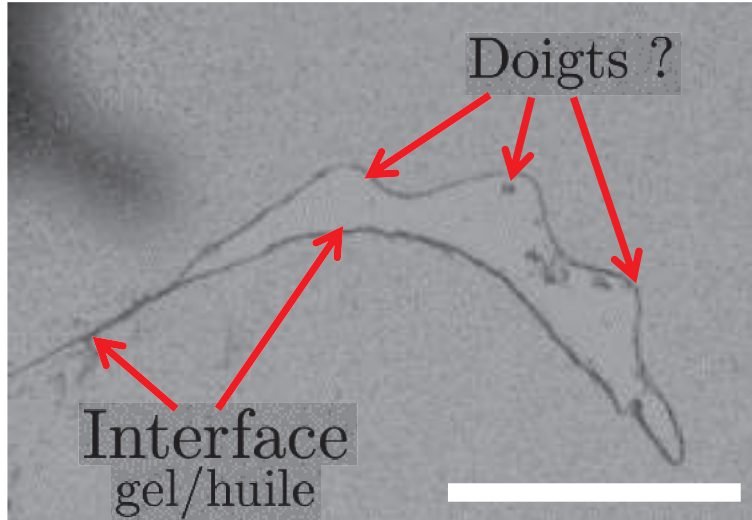


FIGURE 4.2 – Fracture dans une solution de micelles pontées de composition  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.3$  à un débit de  $Q_v = 20$  mL/min. On remarque le motif ressemblant à des doigts sur la tranche de la fracture. Barre 6 mm.

Nous allons commencer par étudier l'évolution de la transition doigt/fracture en fonction de la structure du gel avant de décrire les propriétés des fractures dans le cas où les micelles pontées sont suffisamment longues et enchevêtrées.

## 4.1 Transition digitation/fracture en fonction de la microstructure du gel

Comme dans le chapitre 3, nous mesurons la vitesse maximale à laquelle se propagent les doigts de Saffman-Taylor avant apparition de fractures. Le protocole a été décrit dans les chapitres 1 et 2 et consiste à effectuer un saut du débit d'injection.

Les motifs observés lors de ce saut de débit dépendent fortement de la microstructure du gel. La figure 4.3(a) présente le motif observé dans le cas des microémulsions connectées étudiées au chapitre 3. A partir du doigt apparaissent plusieurs fractures se propageant de façon rectiligne. Dans le cas de micelles pontées enchevêtrées, la figure 4.3(b) montre un motif typique obtenu. On remarque que le motif de fracturation est différent de celui des microémulsions connectées, les fractures ne se propageant plus de façon rectiligne.

Nous commencerons par décrire la mesure de la vitesse de transition doigt/fracture ( $V_{tip}^C$ ) aux faibles valeurs de  $R_{surf}$  où les effets de décollement du gel peuvent être importants. Nous regarderons ensuite l'influence de la micro-structure sur cette vitesse.

### 4.1.1 Comportement pour des micelles suffisamment courtes.

Dans cette section, nous allons étudier des micelles courtes, c'est-à-dire dont le paramètre  $R_{surf}$  est inférieur à 0.2. Au chapitre 2, nous avons mentionné, pour les gels de micelles pontées de paramètre  $R_{surf} \leq 0.2$ , le décollement du gel des surfaces, menant à la formation de canaux ou de fractures aux interfaces verre/gel à la place de phénomènes en volume. Dans certaines expériences avec le gel de paramètre  $R_{surf} = 0.3$  on observe des effets de volume (fracture en volume comme observé à la figure 4.2 et 4.3) accompagnés de décollements que nous allons également décrire. En réalisant les expériences de transition doigt/fracture, nous avons observé l'apparition des canaux/fractures interfaciaux à partir de doigts comme le montre la figure 4.4 pour une solution de micelles pontées

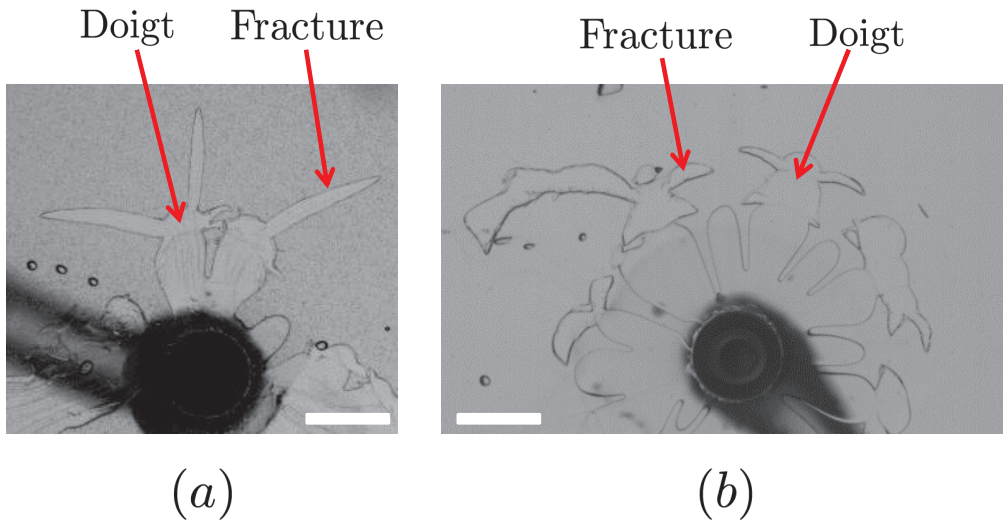


FIGURE 4.3 – Transition doigt/fracture. (a) Pour une microémulsion connectée de composition  $\Phi = 10\%$ ,  $N_s = 10$  : les fractures se propagent en ligne droite depuis le doigt. (b) Pour une solution de micelles pontées de composition  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.3$ , les fractures ne se propagent pas en ligne droite. Barres 6 mm.

de paramètres  $R_{surf} = 0$ . Si on regarde l'apex des doigts sur la figure 4.4 on observe un changement du motif. D'une interface huile/gel bien contrastée dans le cas d'un doigt, nous voyons des structures fines apparaître dont l'interface gel/huile apparaît beaucoup plus contrastée qu'elle ne l'était dans le cas du doigt.

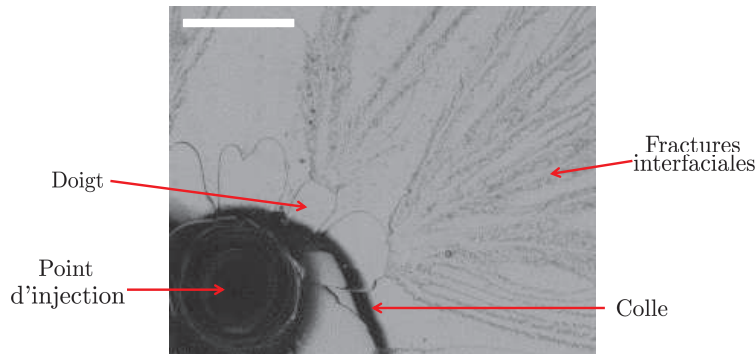


FIGURE 4.4 – Motifs interfaciaux apparaissant à partir d'un doigt dans une solution de micelles pontées de composition  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0$ . La différence de contraste marque la différence entre le doigt en volume (qui est bien résolu) et l'objet en surface qui apparaît flou. Barres : 6 mm.

La figure 4.5 montre une succession d'images pendant une augmentation brutale du débit pour une solution de micelles pontées de paramètre  $R_{surf} = 0.3$ . L'apparition de fractures s'accompagne de la création d'une tache d'huile sur l'une des plaques de verre autour des fractures.

Au chapitre 3, nous avons défini la vitesse critique comme la vitesse du doigt à l'instant où le motif en pointe de doigt forme une fracture en volume. Cette définition ne peut s'appliquer dans le cas où des motifs se forment en surface. Suivant les conditions d'adhérence entre le gel et le verre de la cellule, nous pourrions observer :

- Des fractures interfaciales si le gel adhère faiblement aux surfaces de verres.

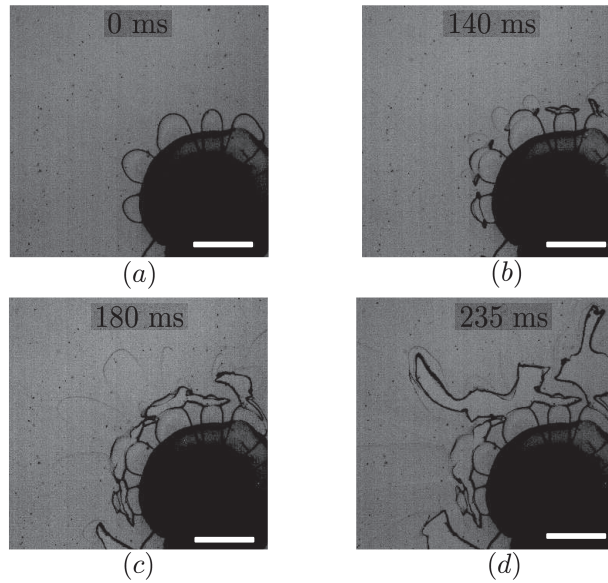


FIGURE 4.5 – Succession d’images prises lors de l’apparition des fractures pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.3$  lors d’un saut de débit entre  $Q_v = 0.01$  mL/min et  $Q_v = 40$  mL/min. A partir d’un doigt (a), des fractures apparaissent (b) puis se propagent (c)(d). On remarque qu’avec la croissance de la fracture, on voit apparaître des structures au second plan (b)(c)(d) correspondant à la croissance d’une tache d’huile sur l’une des interfaces avec les plaques. Barres : 6 mm.

- Des fractures en volume si le gel adhère fortement aux surfaces de verres.

Les doigts se propagent toujours en volume, que le gel adhère fortement ou non aux plaques. C’est quand le gel ne peut plus s’écouler en volume que nous allons éventuellement pouvoir observer des motifs à l’interface. Cela implique que l’origine des motifs, qu’ils soient en volume ou en surface, est associée à une transition entre un comportement fluide et un comportement élastique. Nous définissons ainsi la transition doigt/fracture comme une transition entre un comportement fluide (le doigt) et comportement élastique (fracture en volume ou motif en surface). La vitesse de transition est alors la vitesse à partir de laquelle le doigt ne peut plus s’écouler en volume et donc va, soit fracturer (comme défini au chapitre 3 et comme on l’observe sur les figures 4.5), soit former des motifs en surface (comme observé sur la figure 4.4).

A l’aide de cette définition de la vitesse de transition doigt/fracture, nous avons étudié l’influence de la microstructure du gel sur la transition doigt/fracture.

#### 4.1.2 Influence de la microstructure sur la vitesse de transition

En contrôlant le rapport entre cotensioactif et tensioactif ( $R_{surf}$ ), nous modifions la structure microscopique du gel. En faisant varier la structure du gel, on espère ainsi pouvoir décrire de façon quantitative le lien entre la structure microscopique du gel et l’apparition des fractures. Pour une valeur de  $R_{surf}$  donnée, on peut suivre l’évolution de la vitesse d’un doigt au cours du temps jusqu’à l’apparition de fractures. Pour chacun des doigts, on peut ainsi mesurer la vitesse qu’atteint le doigt à l’instant précédant l’apparition d’une fracture,  $V_{tip}^C$ . On ajuste un cercle sur la pointe des doigts avant que les fractures n’apparaissent pour mesurer le rayon de courbure du doigt à la rupture.

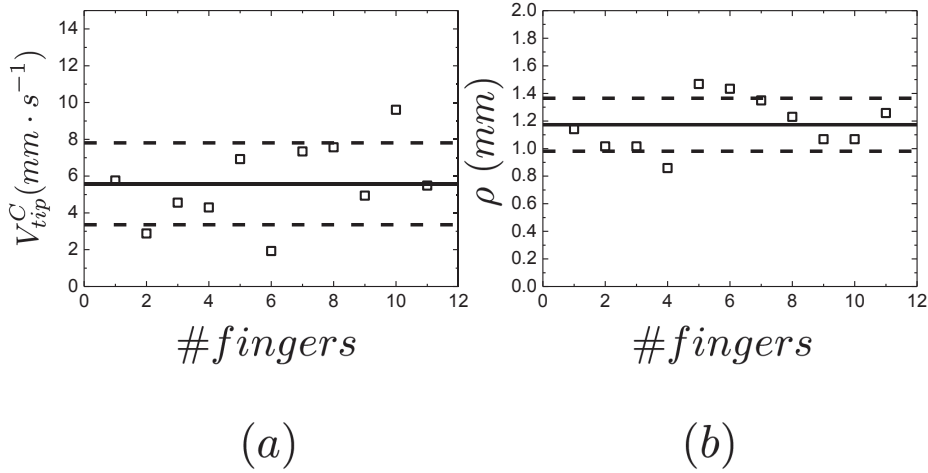


FIGURE 4.6 – Évolution de la vitesse critique  $V_{tip}^C$  (a) et du rayon de courbure  $\rho$  (b) pour 11 doigts lors d’une expérience consistant en un saut du débit d’injection d’huile entre  $Q_v = 0.01$  mL/min et  $Q_v = 10$  mL/min, pour une solution de micelles géantes pontées de paramètres  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.3$ . Les lignes en trait plein représentent la valeur moyenne de la vitesse et les pointillés délimitent la déviation standard.

La courbe 4.6(a) montre la vitesse critique atteinte pour différents doigts d’une expérience. Cette vitesse critique est comprise entre 2 mm/s et 10 mm/s ( $\langle V_{tip}^C \rangle = (5.6 \pm 2.25)$  mm/s). On remarque de plus que le rayon de courbure varie peu en fonction du doigt considéré ( $\langle \rho \rangle = (1.2 \pm 0.2)$  mm comme le montre la figure 4.6(b)).

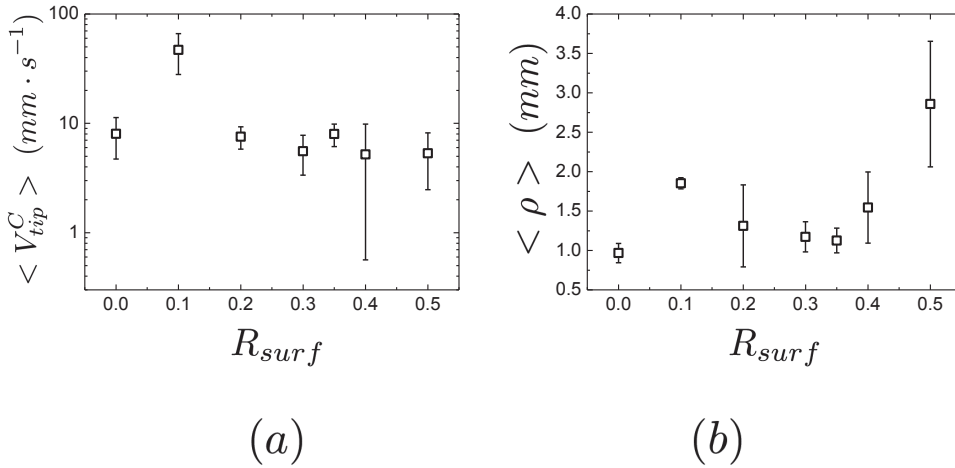


FIGURE 4.7 – Évolution de  $\langle V_{tip}^C \rangle$  et de  $\langle \rho \rangle$  en fonction de  $R_{surf}$ . Les barres d’erreurs représentent la déviation standard, calculée à partir des données expérimentales.

La courbe 4.7(a) représente l’évolution de la vitesse de transition moyenne doigt/fracture en fonction du paramètre  $R_{surf}$  qui contrôle la microstructure du système. Comme c’était déjà le cas pour les microémulsions, la valeur moyenne  $\langle V_{tip}^C \rangle$  doit dépendre des propriétés rhéologiques du gel. A l’exception de la vitesse de transition associée à  $R_{surf} = 0.1$ , la vitesse de transition ne dépend que faiblement du paramètre  $R_{surf}$ . Les mesures associées à  $R_{surf} = 0.1$  sont délicates en raison du temps de relaxation très faible du système (voir figure 4.10). Pour cette valeur de  $R_{surf}$ , on se situe dans les limites de débits que l’on peut imposer dans la cellule. On a alors utilisé le débit maximal

( $Q_v = 52$  mL/min) du pousse-seringue pour observer des événements de fracture. Il convient de noter que, contrairement aux autres valeurs de  $R_{surf}$ , nous n'avons pu observer que quelques doigts se transformant en fracture.

En fonction de la structure du gel, nous avons observé des doigts de rayons de courbure différents dont on montre un exemple à la figure 4.8.

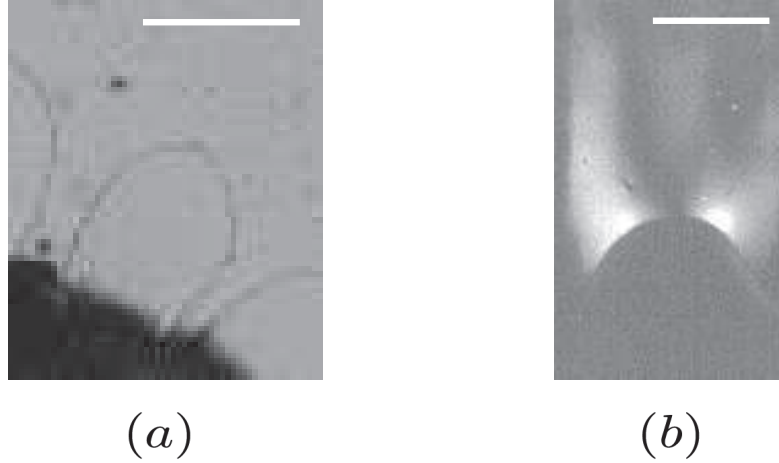


FIGURE 4.8 – Doigt de Saffman-Taylor pris pour deux gels de structure différentes à l'instant précédent l'apparition d'une fracture. (a) En lumière blanche, doigt dans une solution de micelles pontées de composition  $\phi = 9$  % et  $R_{surf} = 0$ . Le rayon de courbure mesuré est de  $\rho = 1.2$  mm. (b) Entre polariseur et analyseur croisés, doigt pour une solution de micelles pontées de composition  $\phi = 9$  % et  $R_{surf} = 0.5$ . Nous avons mesuré un rayon de courbure de  $\rho = 2.54$  mm. Barres : (a) 2.4 mm, (b) 3.7 mm.

Nous avons mesuré le rayon de courbure moyen en fonction du paramètre  $R_{surf}$  (figure 4.6(b)). On remarque, pour  $R_{surf} \leq 0.35$ , que le rayon de courbure à la fracture reste sensiblement constant (le rayon de courbure moyenné sur  $R_{surf}$  vaut  $1.28 \pm 0.34$  mm). Pour  $R_{surf} > 0.35$ , le rayon de courbure augmente jusqu'à atteindre une valeur de  $\langle \rho \rangle = 2.85$  mm pour  $R_{surf} = 0.5$ . Au paragraphe suivant, nous relierons ces deux grandeurs au temps de relaxation du système.

### Estimation d'un taux d'élongation critique

Au chapitre 3, nous avons étudié la transition digitation/fracture dans le cas de microémulsions connectées, et nous avons notamment montré que la grandeur significative pour décrire la transition doigt/fracture était le taux d'élongation défini par la relation :

$$\langle \dot{\epsilon} \rangle = \left\langle \frac{V_{tip}^C}{\rho} \right\rangle \quad (4.1)$$

La courbe 4.9 représente l'évolution de  $\langle \dot{\epsilon} \rangle$  en fonction du paramètre  $R_{surf}$ . A l'exception du point  $R_{surf} = 0.1$ , nous constatons, pour  $R_{surf} > 0.2$ , que le taux d'élongation critique semble (aux barres d'erreurs près) diminuer très légèrement avec  $R_{surf}$ . De la même façon qu'au chapitre 3, nous allons tenter de relier la vitesse à un temps caractéristique du système.

Pour  $R_{surf} < 0.2$ , le matériau se comporte comme un fluide de Maxwell avec un unique temps de relaxation  $\tau$ . Quand  $R_{surf} \geq 0.2$ , le gel possède deux temps de relaxation  $\tau_{slow}$  et  $\tau_{fast}$  comme le montre la figure 4.10, d'après la référence [12].

Le système possédant deux temps caractéristiques, on peut alors définir deux taux d'élongation caractéristiques  $\dot{\epsilon}_C^{fast}$  et  $\dot{\epsilon}_C^{slow}$  associé respectivement à  $\tau_{fast}$  et  $\tau_{slow}$  tels que  $\dot{\epsilon}_C^{fast,slow} = 1/\tau_{fast,slow}$ .

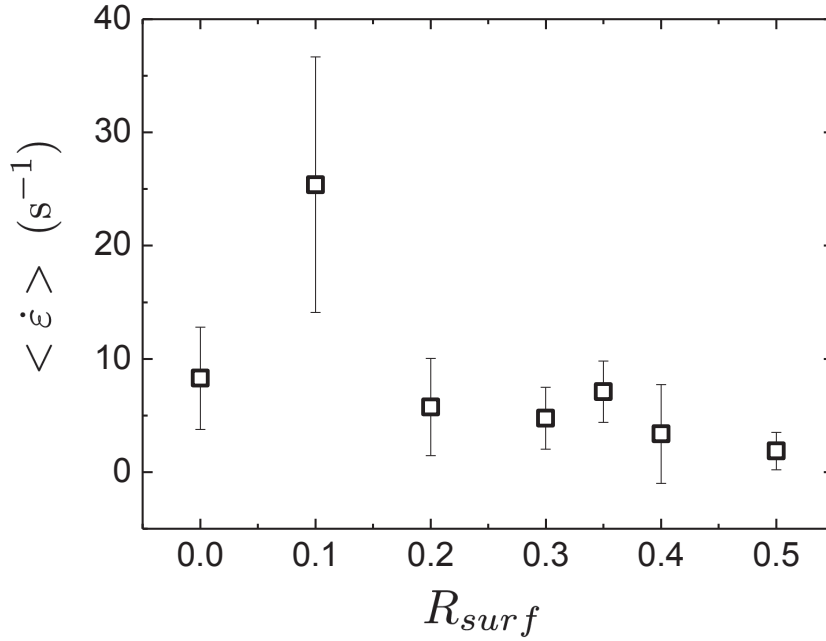


FIGURE 4.9 – Évolution du taux d'élongation telle que calculée par l'équation 4.1 en fonction de la structure du gel représentée par le paramètre  $R_{surf}$ .

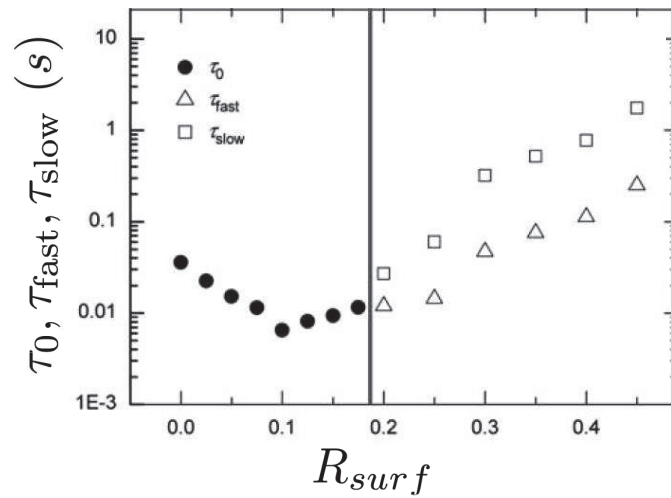


FIGURE 4.10 – Évolution des temps de relaxation en fonction du paramètre  $R_{surf}$  pour une solution de micelles pontées de concentration  $\phi = 9\%$ . D'après [12].

Les figures 4.11(a) et 4.11(b) représentent l'évolution du taux d'élongation (figure 4.9) adimensionné respectivement par  $\tau_{fast}$  et  $\tau_{slow}$  en fonction de la structure du gel (représenté par le paramètre  $R_{surf}$ ).

Dans le cas où le taux d'élongation est adimensionné par  $\tau_{fast}$ , la valeur de  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle \cdot \tau_{fast}$  est centrée autour de l'unité :  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle \cdot \tau_{fast} \sim 0.746 \pm 0.623$ . A contrario, dans le cas où  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle$  est adimensionnée par  $\tau_{slow}$ , quand  $R_{surf} > 0.3$ , le taux d'élongation adimensionné  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle \cdot \tau_{slow}$  devient supérieur à l'unité. Quand  $R_{surf} < 0.2$ , la valeur de  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle \cdot \tau$  ( $\tau_{slow}$  dans le cas de  $R_{surf} = 0.2$ )



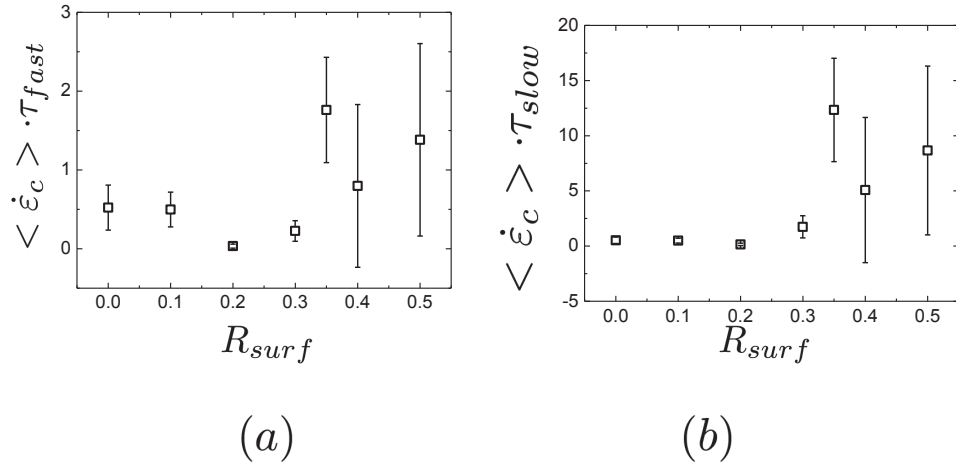


FIGURE 4.11 – Évolution de l'élongation critique  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle$  en fonction du paramètre  $R_{surf}$ . (a)  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle$  adimensionné par  $\tau_{fast}$  pour  $R_{surf} > 0.2$  et par  $\tau$  pour  $R_{surf} < 0.2$ . (b)  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle$  adimensionné par  $\tau_{slow}$  pour  $R_{surf} > 0.2$  et par  $\tau$  pour  $R_{surf} < 0.2$ .

est sensiblement constante :  $\langle \dot{\epsilon}_C \rangle \cdot \tau \sim 0.39 \pm 0.21$ .

Nous allons commencer par discuter de la valeur du taux d'élongation pour  $R_{surf} = 0.1$ . Comme le montre la courbe 4.9, le taux d'élongation pour cette valeur de  $R_{surf}$  est bien plus grand que les taux d'élongation mesuré pour les autres valeurs de  $R_{surf}$ . Cette très haute valeur est due au fait que le temps de relaxation associé à ce gel est très court, le taux d'élongation devant être relié à l'inverse de ce temps il est cohérent de trouver une valeur très élevée du taux d'élongation pour ce gel. Nous pouvons tracer l'évolution de l'inverse du temps de relaxation en fonction de  $R_{surf}$ .

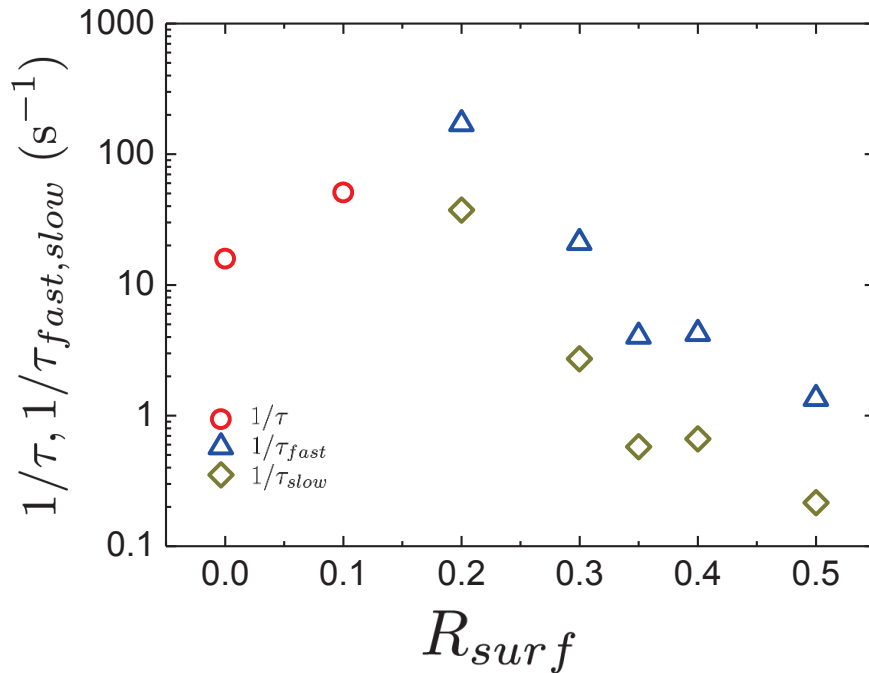


FIGURE 4.12 – Evolution de l'inverse du temps de relaxation en fonction de  $R_{surf}$

L'allure de la courbe 4.12 est proche de la courbe 4.9. Dans les deux cas, nous observons une montée rapide du taux d'élongation ( $1/\tau$  respectivement) entre  $R_{surf} = 0$  et  $R_{surf} = 0.1$  ( $R_{surf} = 0.2$  dans le cas de l'inverse du temps de relaxation. Au-delà de cette valeur, le taux d'élongation (resp.  $1/\tau$ ) décroît. Dans le cas de l'évolution de l'inverse du temps de relaxation, cette diminution est très marquée (presque deux ordres de grandeur de différence entre  $R_{surf} = 0.1$  et  $R_{surf} = 0.5$ ) à la différence du taux d'élongation où cette diminution est plus faible (environ un ordre de grandeur entre  $R_{surf} = 0.1$  et  $R_{surf} = 0.5$ ). La relation  $\langle \dot{\epsilon} \rangle \approx 1/\tau_{fast,slow}$  ne semble plus valide quand les micelles sont suffisamment longues et enchevêtrées.

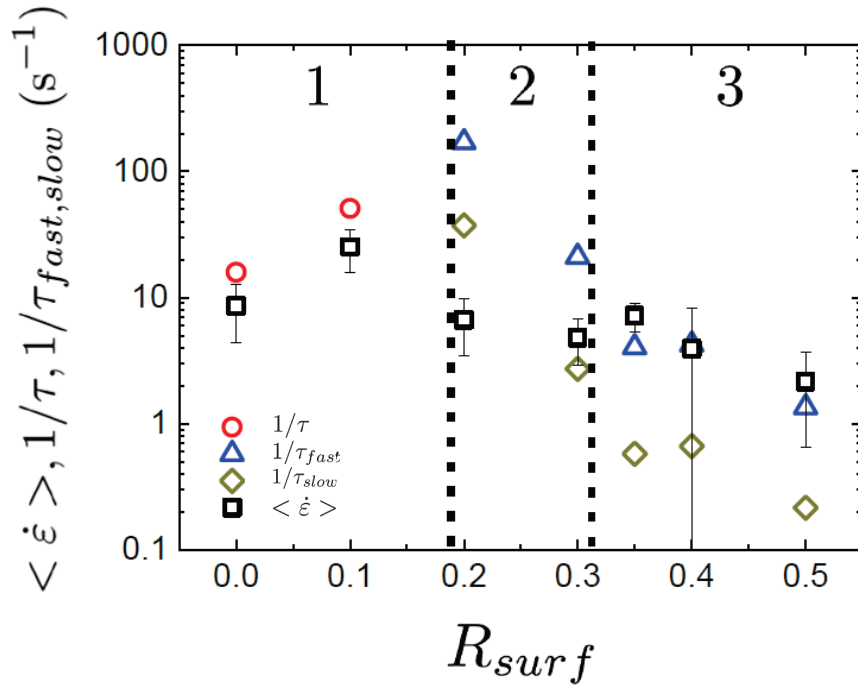


FIGURE 4.13 – Comparaison entre le taux d'élongation ( $\square$ ) défini par la relation 4.1 et l'inverse des temps de relaxation ( $\circ$  rouges,  $\diamond$  verts, et  $\triangle$  bleus) en fonction de la structure du gel. On distingue trois régimes numérotés : 1 quand le taux d'élongation est inférieur à l'inverse du temps de relaxation, 2 pour des comportements intermédiaires et 3 quand le taux d'élongation est toujours supérieur à l'inverse du temps de relaxation.

La figure 4.13 représente sur un même graphique le taux d'élongation mesuré à partir de la relation 4.1 ainsi que l'inverse des temps de relaxation. On y distingue trois régimes :

- Pour  $R_{surf} \leq 0.1$  (zone 1 de la courbe 4.13),  $\langle \dot{\epsilon} \rangle < \frac{1}{\tau}$ , néanmoins, sur cet intervalle le taux d'élongation varie de la même manière que l'inverse du temps de relaxation.
- Pour  $R_{surf} > 0.3$  (zone 3 de la courbe 4.13), le taux d'élongation  $\langle \dot{\epsilon} \rangle$  est toujours plus grand que l'inverse du temps de relaxation.
- Pour  $0.1 < R_{surf} \leq 0.3$  (zone 2 de la courbe 4.13), nous n'observons pas de tendance nette dans l'évolution du taux d'élongation en fonction de l'inverse du temps de relaxation.

Entre  $R_{surf} = 0.3$  et  $R_{surf} = 0.5$ , il y a plus d'un ordre de grandeur de différence entre les temps de relaxation :  $\tau_{fast}$  vaut 0.37 s pour  $R_{surf} = 0.3$  et 4.64 s pour  $R_{surf} = 0.5$ ,  $\tau_{slow}$  vaut 0.048 s pour  $R_{surf} = 0.3$  et 0.74 s pour  $R_{surf} = 0.5$ . Cela implique que le taux d'élongation en  $R_{surf} = 0.5$  devrait être 10 fois plus faible qu'en  $R_{surf} = 0.3$  si l'on fait l'hypothèse que le taux d'élongation est contrôlé

par l'un des temps de relaxation du gel. En définissant le taux d'élongation par la relation 4.1, le taux d'élongation est le rapport entre la vitesse du doigt et le rayon de courbure. La courbe 4.7(a) nous montre que la vitesse de transition doigt/fracture ne varie pas sur cet intervalle de  $R_{surf}$ . Pour que le taux d'élongation diminue d'un ordre de grandeur, il faudrait ainsi que le rayon de courbure augmente d'un ordre de grandeur. Si expérimentalement nous avons mesuré une augmentation du rayon de courbure, celle-ci n'est que d'un facteur 2.5 et non 10. Cette déviation au comportement élastique à grand  $R_{surf}$  est le signe que le gel subit des réorganisations importantes qui vont d'une part permettre à la vitesse de transition d'être une constante, et d'autre part de pouvoir fracturer pour des valeurs du rayon de courbure inférieures à celles attendues.

Nous pouvons comparer ces résultats à ce que l'on observe lors d'une expérience de cisaillement simple. La figure 4.14 montre la courbe d'écoulement  $\sigma(\dot{\gamma})$  ( $\square$  noirs) et l'évolution de la viscosité avec le taux de cisaillement  $\eta(\dot{\gamma})$  ( $\circ$  rouges) d'une solution de micelles pontées de composition  $\phi = 9\%$  et  $R_{surf} = 0.5$ . Les deux lignes en pointillés représentent les deux cisaillements critiques  $1/\tau_{fast}$  (pointillés noirs) et  $1/\tau_{slow}$  (pointillés rouges). D'après cette courbe, le gel est rhéofluidifiant même à  $\dot{\gamma}$  faible. Néanmoins, la rhéofluidification augmente de façon très importante dès que  $\dot{\gamma} > 1/\tau_{slow}$ . La diminution de la viscosité traduit un changement de structure du gel lorsqu'il est soumis à un cisaillement. On en déduit que pour le gel de paramètre  $R_{surf} > 0.3$  la fracture suit un changement de structure.

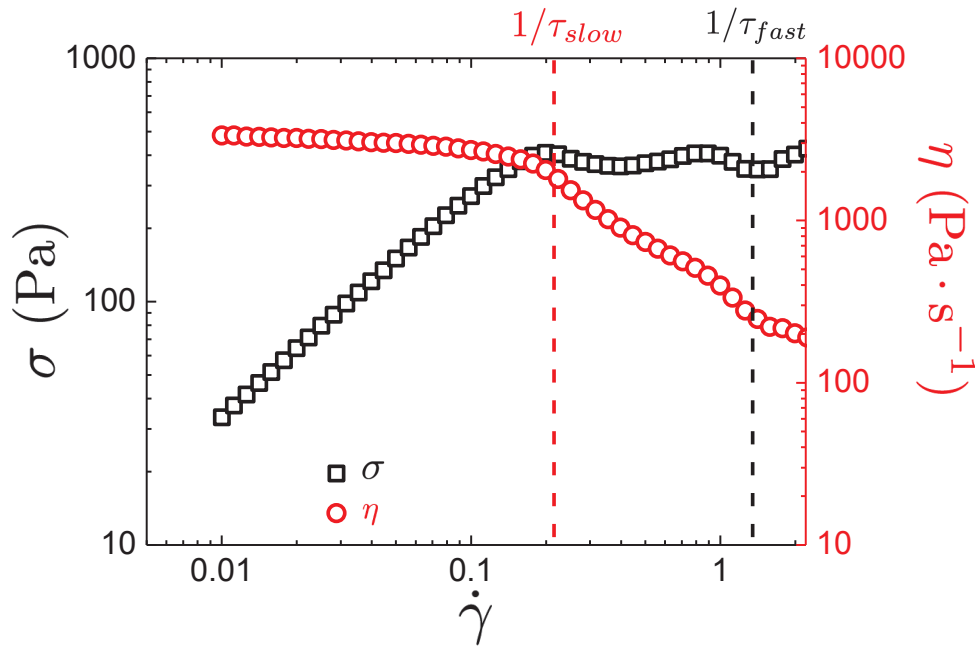


FIGURE 4.14 – Évolution de la contrainte de cisaillement  $\sigma$  et de la viscosité  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $\beta = 55\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ .

Dans le cas des gels de paramètre  $R_{surf} < 0.3$ , la fracture apparaît pour un taux d'élongation comparable à l'inverse du temps de relaxation. D'après les courbes de rhéologie (dont un exemple est montré à la figure 4.15), on peut définir un régime quasi-linéaire (car le gel est faiblement rhéofluidifiant) qui s'étend jusqu'à un taux de cisaillement critique associé à l'inverse du temps de relaxation. On peut ainsi conclure que la fracture pour les échantillons de paramètre  $R_{surf} < 0.3$  s'effectue sans réorganisation de la structure du gel.

Nous avons montré que le comportement de fracturation change avec la structure du gel. Nous avons observé une transition entre deux régimes de fracturation pour  $R_{surf} = 0.3$ . Cela confirme les

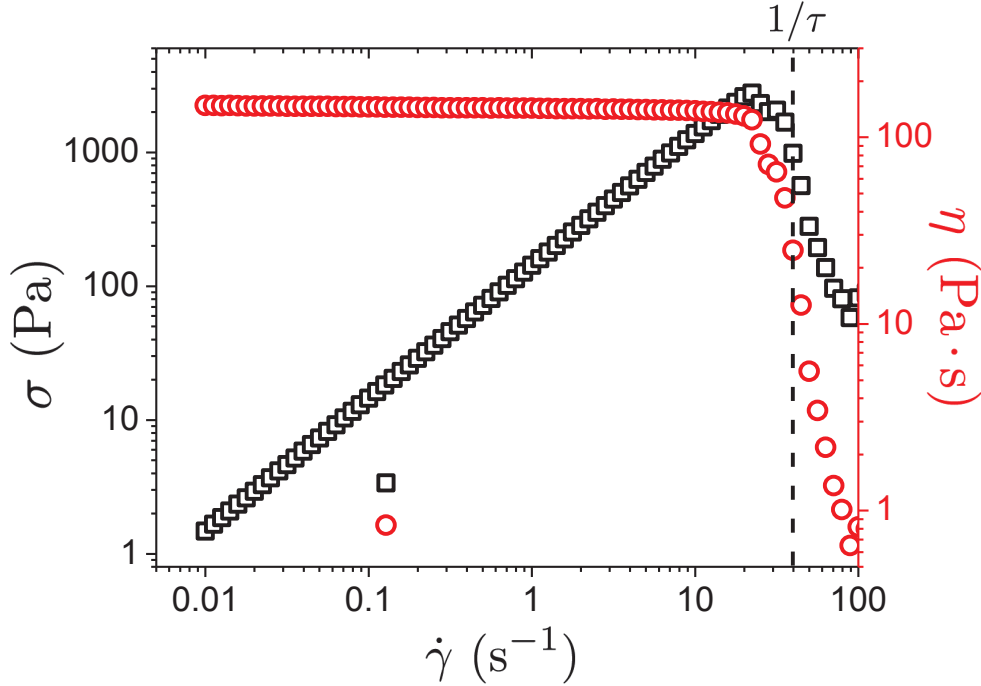


FIGURE 4.15 – Évolution de la contrainte de cisaillement  $\sigma$  et de la viscosité  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ ,  $\beta = 55\%$ , et  $R_{surf} = 0.1$

résultats d'études précédant cette thèse [12] [96], lors d'expériences en cisaillement pur.

En regardant la rhéologie linéaire et non linéaire du gel [12] on constate l'existence de comportements très différents en fonction de la microstructure du gel :

- Quand le paramètre  $R_{surf}$  se situe en-dessous du seuil critique ( $R_{surf}^c \approx 0.11$ ) à partir duquel les micelles s'enchevêtrent, on retrouve un comportement sous écoulement similaire à celui observé dans le cas de microémulsions connectées. Le gel se fracture pour un taux de cisaillement critique :  $\dot{\gamma}_C = 1/\tau$ .
- Quand le paramètre  $R_{surf}$  est suffisamment grand ( $R_{surf} \approx 0.19$ ), le gel est décrit comme un fluide de Maxwell à deux modes. Le comportement sous écoulement est alors plus complexe avec l'apparition d'un plateau de contrainte sur la courbe d'écoulement, caractéristique de la formation de bandes de cisaillement.

Des expériences de rhéologie sous diffusion de rayons X aux petits angles ont ensuite été effectuées à l'ESRF [96]. Deux taux de cisaillement caractéristiques ont alors été introduits :

- $\dot{\gamma}_{thin}$  qui correspond au taux de cisaillement caractéristique de la sortie du régime linéaire,
- $\dot{\gamma}_{crack}$  qui est associé à la nucléation d'une fracture.

Quand le gel est sur le point de fracturer, des fluctuations importantes du signal de diffusion sont mesurées. Le paramètre  $\dot{\gamma}_{crack}$  correspond alors au taux de cisaillement pour lequel ces fluctuations importantes apparaissent. Le paramètre  $\dot{\gamma}_{thin}$  est mesuré en estimant le taux de cisaillement à partir duquel le gel ne suit plus un comportement newtonien.

A l'aide de ces deux taux de cisaillement caractéristiques, le paramètre  $\Delta = \frac{\dot{\gamma}_{crack} - \dot{\gamma}_{thin}}{\dot{\gamma}_{thin}}$  est défini. La mesure de ce paramètre permet de définir plusieurs régimes de fracturation du gel :

- Quand  $R_{surf} \leq 0.3$ ,  $\Delta \approx 1$ , ce qui signifie que la fracture se produit pour des taux de cisaillement comparables au taux de cisaillement caractéristique de sortie du régime linéaire.
- Quand  $R_{surf} \geq 0.3$ ,  $\Delta$  devient plus grand que l'unité, ce qui indique que le gel devient rhéofluidifiant avant de fracturer.

La transition entre ces deux régimes a été trouvée entre  $R_{surf} = 0.3$  et  $R_{surf} = 0.35$ . Néanmoins, le mécanisme gouvernant la transition n'a pas pu être déterminé clairement, les gels de part et d'autres de la transition présentant peu de différences que ce soit en terme de structure ou de comportement sous écoulement.

A travers l'analyse ci-dessus de la transition doigt/fracture, nous avons trouvé un changement de comportement vis-à-vis de la fracture pour  $R_{surf} \simeq 0.3$ , ce qui est compatible avec les études précédentes.

Contrairement aux études précédentes, les mesures ne sont pas réalisées dans un état stationnaire car la fracture apparaît dès que les doigts atteignent leur vitesse critique  $V_{tip}^C$ . C'est la mesure de cette vitesse qui permet de définir des taux de cisaillement et d'élongation.

En conclusion, nous avons défini deux modes de fracturation. Un mode qualifié de "fragile" (correspondant aux gels de paramètres  $R_{surf} \leq 0.1$ ) où l'apparition des fractures est contrôlée par une loi similaire à celle observée pour les microémulsions connectée. L'autre mode que l'on va qualifier de "ductile" apparaît quand les micelles sont suffisamment enchevêtrées (c'est-à-dire pour des gels de paramètres  $R_{surf} > 0.3$ ), en accord avec des résultats antérieurs [96]. Nous notons l'existence d'une gamme de gels (de paramètres  $0.1 < R_{surf} \leq 0.3$ ) pour lesquelles nous ne sommes pas en mesure de préciser le caractère "fragile" ou "ductile" des fractures.

Après avoir décrit la transition doigt/fracture, nous allons nous concentrer sur la propagation de fracture dans des gels de paramètre  $R_{surf} > 0.3$ . A l'aide d'une étude de la biréfringence associée à l'orientation des micelles sous écoulement, nous décrirons les motifs de biréfringence observés pendant l'écoulement du gel avant l'apparition de fracture, puis nous analyserons le signal de biréfringence qui apparaît en pointe de fracture.

## 4.2 Propagation de fractures dans des micelles pontées en régime enchevêtré

Dans cette section, on se concentre sur l'étude de la propagation de fractures dans le régime enchevêtré. Comme on l'a vu précédemment, quand  $R_{surf} > 0.3$ , l'apparition d'une fracture s'accompagne de réorganisations de structure dans le gel. Nous avons réalisé des expériences de propagation de fractures dans le régime  $R_{surf} > 0.3$ . Quand des micelles enchevêtrées sont sous écoulement, elles peuvent s'aligner ce qui se traduit par l'existence d'une biréfringence : l'indice de réfraction dépend de la direction de polarisation de la lumière. Nous avons équipé la cellule d'un polariseur et d'un analyseur croisés, permettant de quantifier localement cette biréfringence.

Nous allons d'abord décrire les motifs observés lors de la préparation d'expériences de fracturation, puis nous nous intéresserons spécifiquement à la pointe de fracture. Les propriétés du signal de biréfringence associé à la pointe de fracture seront analysées.

### 4.2.1 Observations qualitatives

Nous avons équipé le montage d'un polariseur et d'un analyseur, croisés, de façon à mesurer la biréfringence des gels sous écoulement. Comme décrites au chapitre 2, ces expériences consistent en l'injection d'huile, à débit contrôlé, dans le gel préalablement injecté dans la cellule.

En éclairant l'échantillon par une source lumineuse placée perpendiculairement aux faces de la cellule et en mesurant l'intensité  $I$  transmise en sortie de l'analyseur, l'angle  $\theta$  entre l'orientation moyennes des micelles et l'orientation de l'analyseur vérifie la relation

$$I = I_p \sin^2(2\theta) \sin^2\left(\frac{\pi}{\lambda} e \Delta n\right), \quad (4.2)$$

où  $I_p$  est l'intensité incidente,  $\lambda$  la longueur d'onde de la lumière,  $e$  l'épaisseur de l'échantillon et  $\Delta n$  la biréfringence (différence entre les indices ordinaire et extraordinaire). Si l'on prend comme valeur de  $\Delta n = 10^{-5}$ , la valeur de  $\frac{\pi}{\lambda} e \Delta n \approx 10^{-2}$ , on supposera donc que  $\frac{\pi}{\lambda} e \Delta n \ll 1$  pour toutes les longueurs d'ondes contenues dans la lumière blanche de la source lumineuse. Bien que rien n'assure que  $\Delta n$  soit constant dans l'épaisseur de la cellule, nous modifions, sans justification rigoureuse, la relation 4.2 par

$$I \propto \langle \Delta n^2 \rangle \sin^2(2\theta), \quad (4.3)$$

où  $\langle \Delta n^2 \rangle$  est issu d'une biréfringence moyennée sur l'épaisseur de la cellule.  $\langle \Delta n^2 \rangle$  est d'autant plus grand que la structure du fluide est anisotrope.

Nous allons commencer par décrire les différents motifs d'écoulement observés avant l'apparition de la fracture. Nous décrirons ensuite les motifs associés spécifiquement aux fractures.

#### Écoulement du gel avant l'apparition d'une fracture

Lorsqu'une expérience débute, l'interface huile/gel se situe à environ 1 cm en amont de l'entrée de la cellule. Il est ainsi possible d'observer l'écoulement du gel avant l'apparition des fractures, l'huile n'étant pas encore sortie du tuyau d'injection. Deux types de motifs d'écoulement ont été observés :

- l'écoulement du gel à bas débit, formant un signal de birefringence en "croix de Malte" (figure 4.16).
- une instabilité d'écoulement que nous nous contenterons de présenter ici (une étude quantitative sera présentée au chapitre 5).

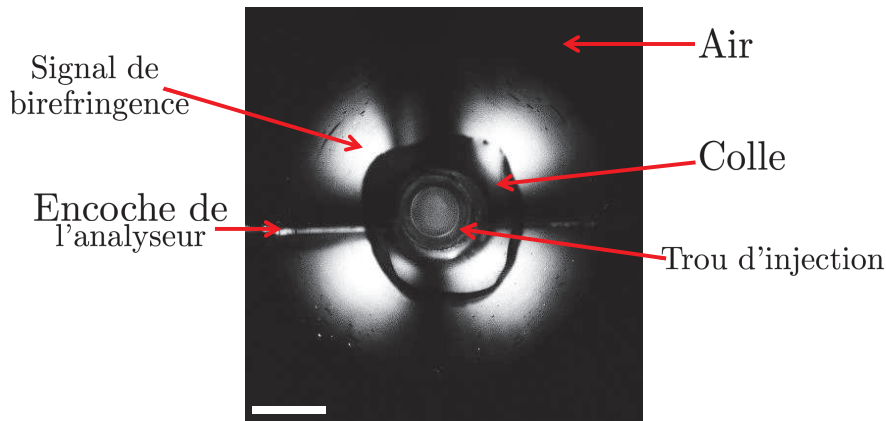


FIGURE 4.16 – Croix de Malte observée lors du remplissage de la cellule par une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$  à un débit de  $Q_V = 0.1$  mL/min. Barre 6 mm.

Sous écoulement, les micelles peuvent s'aligner dans la direction de l'écoulement. Lors du remplissage de la cellule, le gel s'écoule en s'orientant radialement (comme indiqué à la figure 4.18). Comme

défini par la relation 4.2,  $\theta$  est l'angle entre la direction du polariseur et la direction moyenne des micelles. D'après l'équation 4.3,  $I \approx \langle \Delta n^2 \rangle \sin^2(2\theta)$ . Dans le cas d'un écoulement radial,  $\theta$  s'identifie avec l'angle polaire car l'axe optique est aligné avec la direction de l'écoulement (comme représenté à la figure 4.18). L'intensité transmise s'écrit donc, en coordonnées polaires :  $I(r, \theta) \approx \langle \Delta n^2 \rangle \sin^2(2\theta)$  où  $\langle \Delta n^2 \rangle$  est une fonction de la distance au point d'injection. Ce signal caractéristique, maximal pour  $\theta = \pi/4[\pi/2]$  est appelé croix de Malte et on en donne un exemple à la figure 4.16. La figure 4.17, montre un profil angulaire pris à une distance de 10 mm, que l'on a ajusté par la relation définie ci-dessus. Cela nous permet de justifier l'appellation de croix de Malte pour les motifs de biréfringence observés au début des expériences.

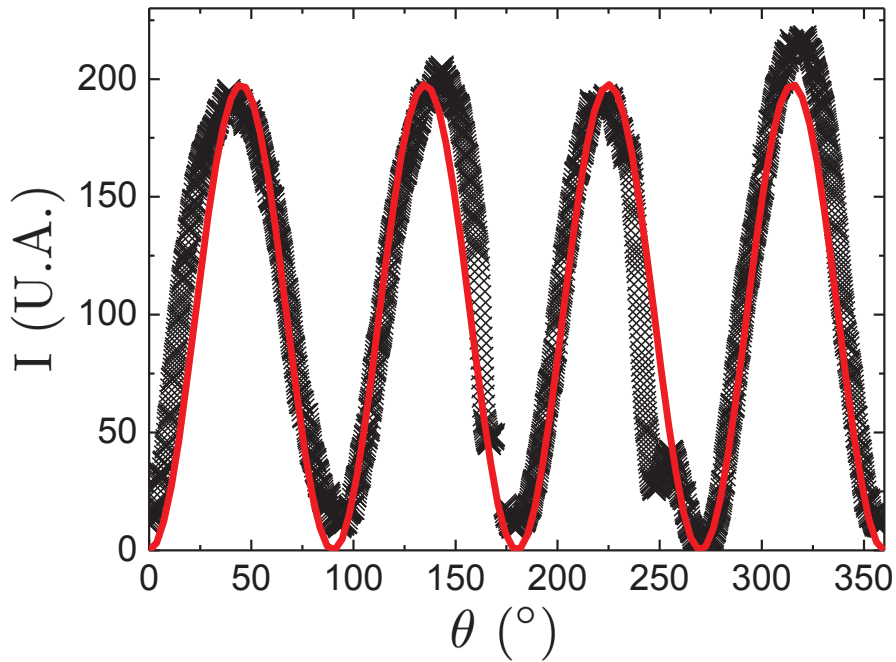


FIGURE 4.17 – Profil angulaire de l'intensité du signal de biréfringence à 10 mm du point d'injection pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$  lors d'une expérience à un débit de  $Q_V = 0.1$  mL/min. La ligne rouge représente l'ajustement des données par la relation  $I(r, \theta) = A \sin^2(2\theta)$ . Le signal est maximal en  $\theta = \frac{\pi}{4}, \frac{3\pi}{4}, \frac{5\pi}{4}, \frac{7\pi}{4}$ .

Le remplissage s'effectue à des débits très faibles. Lorsque l'huile est injectée, les débits sont beaucoup plus importants. Lors de certaines expériences, nous avons observé des comportements singuliers de l'interface gel/air avant que l'huile (donc les fractures) n'apparaisse dans la cellule : apparition soudaine de protubérances lors de la mise sous écoulement du gel. Ces protubérances indiquent que l'écoulement du gel n'est plus radial. La figure 4.19 montre un exemple de ces protubérances apparues alors que la tache de gel initiale était parfaitement circulaire.

En réalisant des mesures de biréfringence, nous avons remarqué l'existence d'un signal de biréfringence particulier qui se propage depuis le point d'injection (figure 4.20). Ce signal est associé à la formation des protubérances à l'interface air/gel, et pourrait expliquer le comportement singulier de certaines fractures qui vont se propager dans un milieu hétérogène. Des instabilités qualitativement similaires à ce que nous observons ont été observées dans des cristaux liquides nématiques par Gleeson et al. [97] qui ont interprété ce phénomène comme résultant de la propagation d'excitations induites par le cisaillement. Ces instabilités font l'objet d'un chapitre dédié où nous avons caractérisé de façon quantitative ce phénomène en utilisant des micelles géantes enchevêtrées (non connectées).

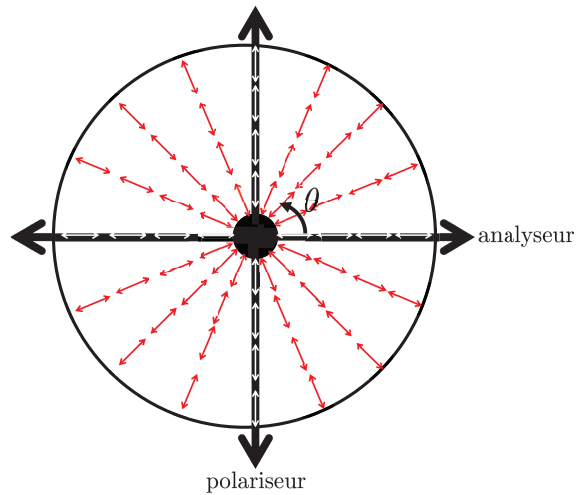


FIGURE 4.18 – Représentation schématique de la cellule remplie. Le cercle noir représente l’interface gel/air, les flèches fines montrent l’orientation des micelles autour du point d’injection. Les deux flèches noires épaisses correspondent aux orientations respectives du polariseur et de l’analyseur.

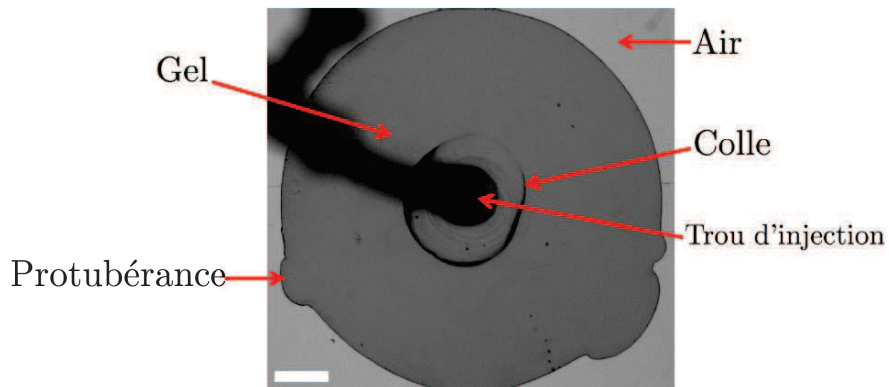


FIGURE 4.19 – Protubérances qui apparaissent à l’interface gel/air lors du début de l’injection d’huile à un débit de 0.3 mL/min pour un gel de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.4$ . La tache initiale est circulaire avant qu’elle ne se déforme peu de temps après le démarrage de l’expérience (et avant l’apparition d’une fracture). Barre 6 mm



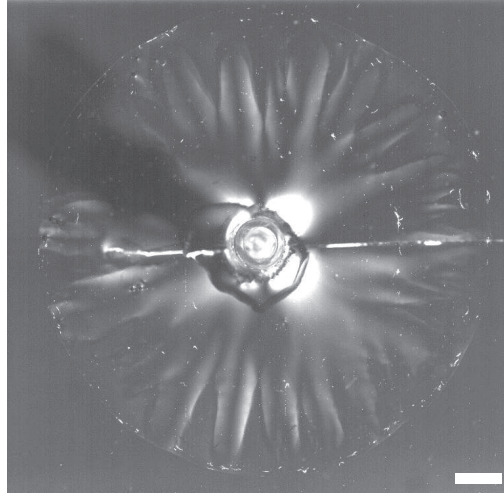


FIGURE 4.20 – Motif de biréfringence observé avant l'apparition de l'huile dans la cellule pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ . Chacune des branches observées va se propager jusqu'à l'interface gel/air pour donner naissance à une protubérance. Barre 6 mm

### Fracturation du gel

En fonction du débit, lorsque l'huile arrive dans la cellule, nous observons des structures variées :

- Pour des micelles pontées et enchevêtrées de paramètres  $R_{surf} = 0.5$ , à bas débit ( $Q_V < 1$  mL/min) : nous n'observons que des fractures, qui ne se propagent pas en ligne droite.
- Au fur et à mesure de l'augmentation du débit, on remarque l'apparition d'une zone endommagée de gel (identifiée par un changement d'apparence du gel) autour du point d'injection dont on montre à la figure 4.21 l'évolution avec le débit.
- Aux plus hauts débits, cette zone possède une forme caractéristique en étoile comme on le voit aux figures 4.21(c) et (d). Dans ce cas les fractures créées vont toujours sortir de la zone endommagée par les pointes de l'étoile comme le montre la figure 4.22. En diminuant le débit, cette zone va peu à peu perdre sa forme (figure 4.21(b)) avant de disparaître complètement à faible débit (figure 4.21(a)). Dans ce cas de figure, les fractures vont pouvoir se propager librement.

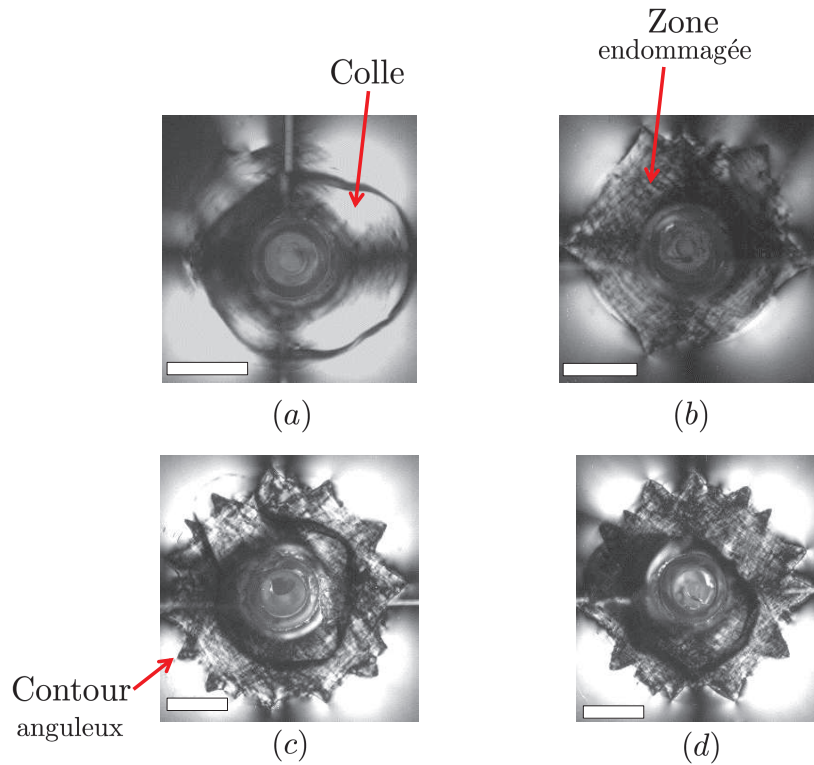


FIGURE 4.21 – Observation entre polariseur et analyseur croisés d’une zone à proximité du point d’injection pour différents débits d’injection  $Q_v$  pour un gel de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ . (a)  $Q_v = 1$  mL/min. (b)  $Q_v = 2$  mL/min. (c)  $Q_v = 10$  mL/min. (d)  $Q_v = 20$  mL/min. Barres 6mm.

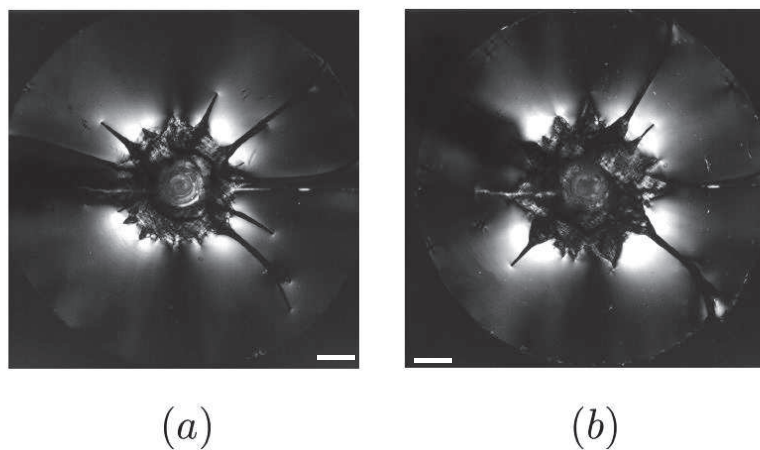


FIGURE 4.22 – Fractures se propageant à partir de la pointe de la zone d’endommagement pour un gel de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$  : (a)  $Q_V = 10$  mL/min. (b)  $Q_V = 20$  mL/min. Barres 6 mm.

Au paragraphe précédent, nous avons mis en évidence l’existence de protubérances sur l’interface gel/air associées à la rupture de l’écoulement radial. Associées à ces protubérances, des fractures adoptent des formes et des comportements non triviaux comme l’illustre la succession d’images (figures 4.23) montrant le comportement d’une fracture au cours du temps. Certaines vont ainsi arrêter

de se propager et se mettre à s'élargir (figure 4.2), des structures rappelant des doigts de Saffman-Taylor pouvant nucléer le long de la surface de fracture comme le montre la figure 4.2.

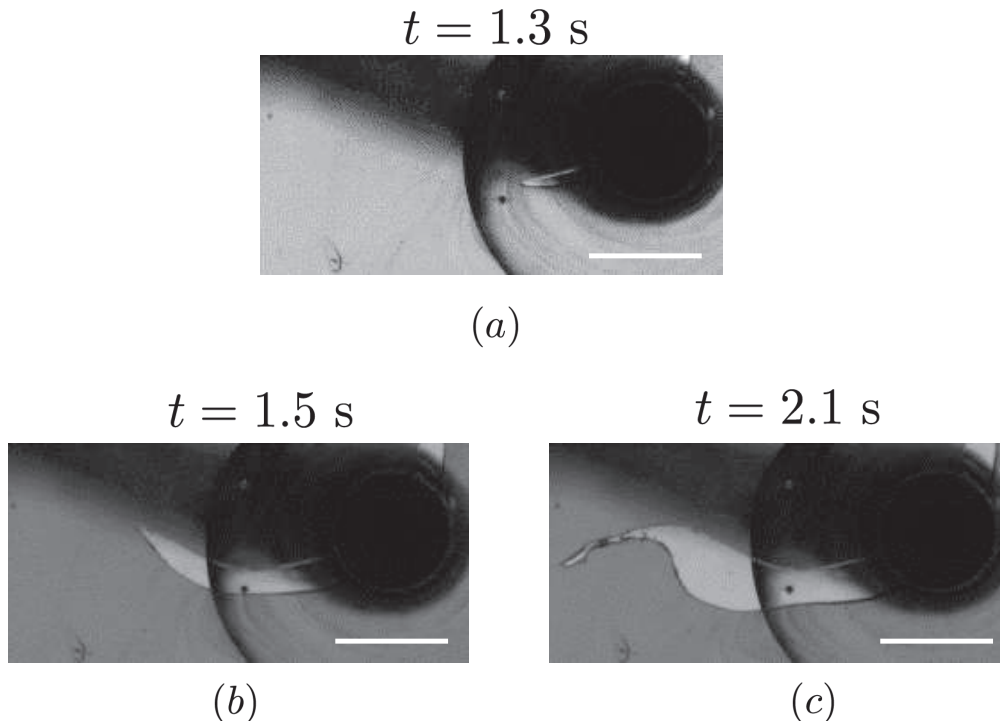


FIGURE 4.23 – Succession d'images montrant la propagation d'une fracture dans une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.4$ . (a) Peu après son apparition, la fracture se déplace rectilignement ; (b) La fracture se met rapidement à tourner ; (c) La fracture s'est développée latéralement de manière anormale, puis la fracture réalise un changement brusque de direction de propagation. Barres 6 mm.

Nous avons observé des fractures pour différents débits d'injection, nous permettant d'examiner une gamme large de vitesses de fracture (entre 35 mm/s et 355 mm/s). Pour chacune des fractures, nous avons observé à la pointe de la fracture un signal de biréfringence (figure 4.24). A la section suivante, une analyse quantitative de ce signal et de son évolution avec la vitesse de propagation de la fracture est présentée.

#### 4.2.2 Biréfringence associée à une pointe de fracture

Comme le montre la figure 4.24(b), chaque pointe de fracture possède un signal de biréfringence qui lui est associé. Ce signal, très anisotrope, est constitué de deux lobes d'apparence symétrique par rapport à la pointe de fracture et sont orientés normalement par rapport à la direction de propagation. Afin de mesurer la manière dont le signal décroît depuis la pointe de fracture, nous allons utiliser une technique similaire à celle décrite au chapitre 2 (§2.3.1) qui a été utilisée pour extraire la forme de fracture au chapitre 3 (§3.2). Connaissant la direction de propagation, nous allons définir une ligne normale à la direction de propagation, indexée par l'abscisse  $d$ . Cette ligne est centrée sur la pointe comme le résume le schéma 4.28.

A partir de cette ligne, nous mesurons l'évolution du signal en fonction de la position le long de la ligne. La courbe 4.25 montre un profil typique pour une fracture se propageant à  $V_{tip} = 35 \text{ mm/s}$  pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ . Le signal est maximum au voisinage de la pointe de fracture, puis décroît de façon exponentielle lorsque l'on s'éloigne de la

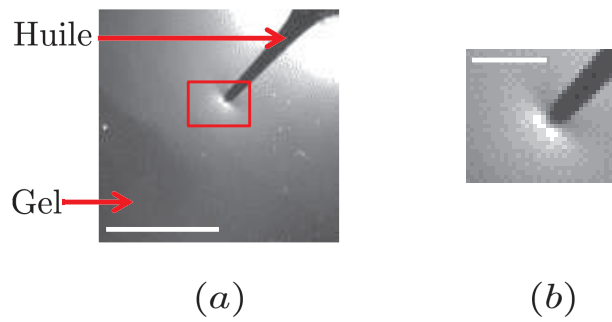


FIGURE 4.24 – (a) Propagation d’une fracture dans une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$  à un débit  $Q_v = 20$  mL/min. La fracture se propage à une vitesse de :  $V_{tip} = 128$  mm/s. Barre 6 mm. (b) Zoom sur la pointe de fracture (carre rouge de la figure (a)). Barre 1.4 mm.

pointe. Il est ainsi possible de définir une taille caractéristique  $\chi$  associée à la décroissance du signal de biréfringence. Nous allons étudier cette taille en fonction de la vitesse. Néanmoins, il convient tout d’abord de pouvoir la déterminer correctement !

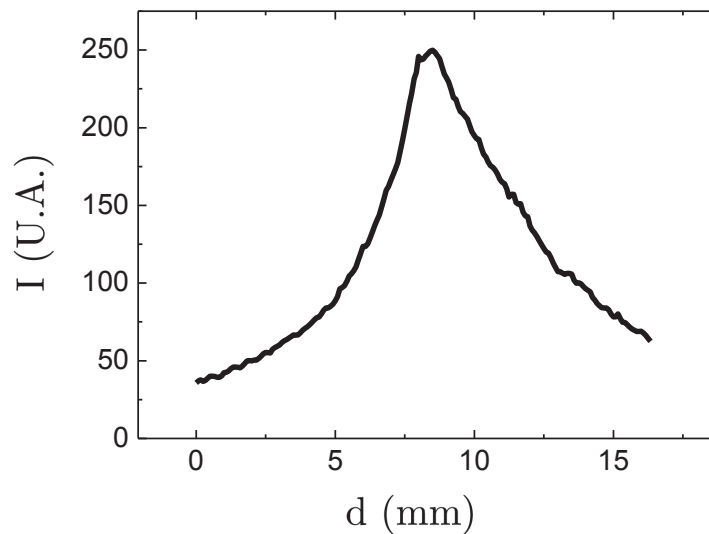


FIGURE 4.25 – Signal de biréfringence associé à une droite orientée normalement à la direction de propagation avec pour origine la pointe de fracture, pour une solution de micelles pontées de composition  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ .

### 4.2.2.1 Extraction du signal associé à la pointe à partir des données expérimentales

Le signal tel qu'il est mesuré sur la figure 4.25 représente la résultante d'un signal associé à l'écoulement (la croix de Malte) noté  $I_{back}$  et d'un signal associé à la pointe de fracture  $I_{tip}$ . Nous obtenons  $I_{back}$  en mesurant le signal le long de la ligne avant l'apparition de la fracture comme l'illustre la figure 4.26. Quand la distance  $d$  est grande, c'est-à-dire lorsque l'on se place loin de la pointe de fracture, le signal associé à l'écoulement  $I_{back}$  et celui associé à la pointe sont confondus, autrement dit, il existe une longueur caractéristique au-delà de laquelle la présence de la pointe n'a plus d'impact sur le signal de biréfringence mesuré.

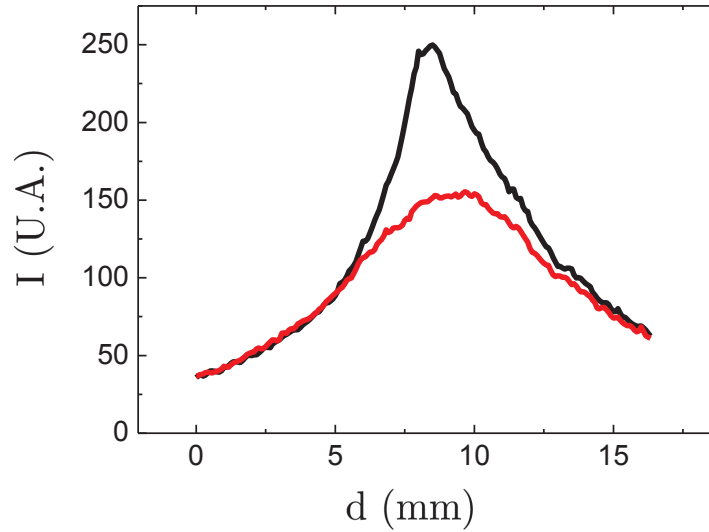


FIGURE 4.26 – En noir, signal de biréfringence associé à une droite orientée par la normale à la direction de propagation avec pour origine la pointe de fracture. En rouge, signal associé à cette droite avant que la fracture n'apparaisse.

Pour que cette mesure soit valide il faut, entre l'instant où on a mesuré le signal associé au fond et l'instant où l'on mesure le signal associé à la fracture, que le signal associé à l'écoulement n'ait pas été modifié de manière importante. Pour réaliser cette analyse du signal associé à la pointe de fracture, nous avons choisi uniquement des fractures vérifiant cette condition. On va donc extraire le signal normalisé associé à la fracture via la relation :

$$I_{tip} = \frac{I}{I_{back}} - 1. \quad (4.4)$$

Le signal  $I_{tip}$  ainsi obtenu va être, en général, dysymétrique comme le montre la figure 4.27. Cette figure montre, en fonction de la valeur absolue de la distance à la pointe  $|d|$ , un signal typique obtenu que l'on peut ajuster par une loi exponentielle :

$$I_{tip}(d) = I_0 e^{-|d|/\chi}. \quad (4.5)$$

En soustrayant le signal associé à l'écoulement de fond, nous pensions avoir annulé les composantes angulaires liés à la croix de Malte. Néanmoins, il subsiste la composante angulaire dans l'équation 4.3 associé à l'orientation des micelles de part et d'autre de la fracture. Afin de s'en affranchir, nous allons tenir compte de l'orientation des micelles de part et d'autre de la pointe de fracture. Le schéma 4.28 représente l'orientation de l'axe optique dû à la biréfringence des micelles en deux

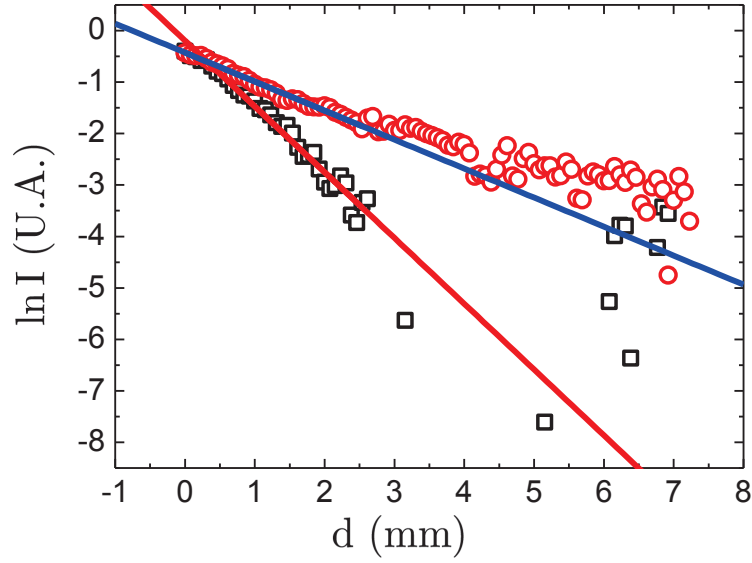


FIGURE 4.27 – Signal de biréfringence associé à la pointe de fracture en fonction de la distance à la pointe pour une fracture se propageant à  $V_{tip} = 35$  mm/s pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ . Chacune des courbes correspond à un côté de la fracture. On remarque qu’elles sont très différentes et que le paramètre  $\chi$  est différent pour chacune d’elles :  $\chi = 0.78$  mm ( $\square$  noirs),  $\chi = 1.78$  mm ( $\circ$  rouges).

points (1) et (2), symétriques l’un de l’autre par rapport à l’axe de propagation de la fracture. Par symétrie, l’orientation des micelles en (1) et (2) est aussi symétrique (nous supposons que la fracture se propage radialement, et que les éventuelles interactions entre les fractures sont négligeables). La biréfringence  $\Delta n$  est, toujours par symétrie, la même en (1) et en (2). Si la fracture est définie par sa direction de propagation ( $\theta_0$  en coordonnées polaires), l’orientation des micelles en (1) et en (2) avec la direction de l’analyseur sont définis par les angles  $\theta_0 - \theta$  et  $\theta_0 + \theta$ , respectivement. D’après l’équation 4.3, l’intensité du signal de biréfringence s’écrit comme le produit d’une fonction associée à l’orientation des micelles et d’une fonction liée à la biréfringence que l’on va appeler ici  $\tilde{I}_0$ . La biréfringence étant identique en (1) et en (2), les intensités  $I_{tip}^1$  et  $I_{tip}^2$  de part et d’autre de la pointe de fracture et à la distance  $d$  de cette dernière peuvent être écrites de la façon suivante :

$$I_{tip}^1 = \tilde{I}_0(d) \cdot \sin^2[2(\theta_0 - \theta)] \quad (4.6)$$

$$I_{tip}^2 = \tilde{I}_0(d) \cdot \sin^2[2(\theta_0 + \theta)] \quad (4.7)$$

$\tilde{I}_0(d)$  est relié à la différence d’indice  $\Delta n$  qui est la même de part et d’autre de la pointe de fracture. Cette grandeur, qui varie uniquement avec la distance à la pointe de fracture, permet d’obtenir des informations sur la microstructure locale du fluide complexe. A partir de  $I_{tip}^1$  et de  $I_{tip}^2$ , nous allons déterminer les valeurs de  $\theta$  et de  $\tilde{I}_0(d)$ .

Afin de déterminer la valeur de  $\theta$ , nous définissons le paramètre  $J$  que l’on peut mesurer expérimentalement :

$$J = \frac{I_{tip}^1 - I_{tip}^2}{I_{tip}^1 + I_{tip}^2}. \quad (4.8)$$

En remplaçant dans l’équation 4.8 les signaux de biréfringence par leur expression en fonction de  $\theta$  (équations 4.6 et 4.7) on obtient :

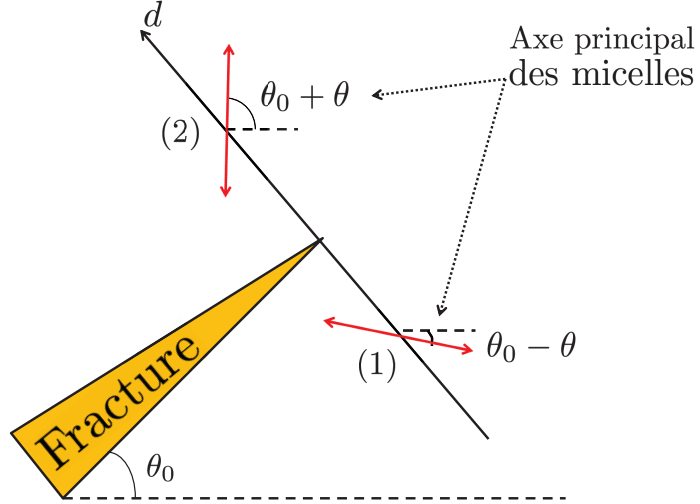


FIGURE 4.28 – Orientation des micelles de part et d’autre de la pointe de fracture.  $\theta_0$  correspond à l’orientation de la fracture par rapport à une direction de l’analyseur. Les micelles situées en (1) et en (2) sont orientées dans la direction  $\pm\theta$  par rapport à la pointe de fracture

$$J = \frac{\tilde{I}_0(\sin^2[2(\theta_0 - \theta)] - \sin^2[2(\theta_0 + \theta)])}{\tilde{I}_0(\sin^2[2(\theta_0 - \theta)] + \sin^2[2(\theta_0 + \theta)])}. \quad (4.9)$$

Posons  $X = \cos(4\theta)$  et exprimons  $J$  en fonction de  $X$ . Pour cela, commençons par exprimer  $I_{tip}^1$  et  $I_{tip}^2$  en fonction de  $X$  :

$$I_{tip}^1 = \frac{\tilde{I}_0}{2}[1 - X \cos(4\theta_0) - \sin(4\theta_0)\sqrt{1 - X^2}], \quad (4.10)$$

$$I_{tip}^2 = \frac{\tilde{I}_0}{2}[1 - X \cos(4\theta_0) + \sin(4\theta_0)\sqrt{1 - X^2}]. \quad (4.11)$$

Nous arrivons ainsi à l’expression de  $J$  en fonction de  $X$  :

$$J = \frac{-\sin(4\theta_0)\sqrt{1 - X^2}}{1 - \cos(4\theta_0)X}. \quad (4.12)$$

Nous obtenons ainsi l’équation 4.13 qui, connaissant  $J$ , permet de calculer  $\theta$  :

$$(J^2 \cos^2(4\theta_0) + \sin^2(4\theta_0))X^2 - 2J^2 \cos(4\theta_0)X + J^2 - \sin^2(4\theta_0) = 0. \quad (4.13)$$

Cette équation possède deux solutions  $X_1$  et  $X_2$ , qui permettent d’obtenir deux valeurs possibles de l’angle  $\theta$  en fonction de la distance :

$$X_1 = \frac{J^2 \cos(4\theta_0) + \sin(4\theta_0)^2 \sqrt{1 - J^2}}{J^2 \cos^2(4\theta_0) + \sin(4\theta_0)^2} = \cos(4\theta), \quad (4.14)$$

$$X_2 = \frac{J^2 \cos(4\theta_0) - \sin(4\theta_0)^2 \sqrt{1 - J^2}}{J^2 \cos^2(4\theta_0) + \sin(4\theta_0)^2} = \cos(4\theta). \quad (4.15)$$

Pour chacune des solutions de l'équation 4.13, on peut calculer  $\tilde{I}_0(d)$  à l'aide de la relation :

$$\tilde{I}_0(d) = \frac{I_{tip}^1}{\sin^2[2(\theta_0 - \theta)]} = \frac{I_{tip}^2}{\sin^2[2(\theta_0 + \theta)]}. \quad (4.16)$$

Les figures 4.29(a) et (b) représentent  $\tilde{I}_0$  en fonction de la distance à la pointe pour chacune des solutions de l'équation 4.13.

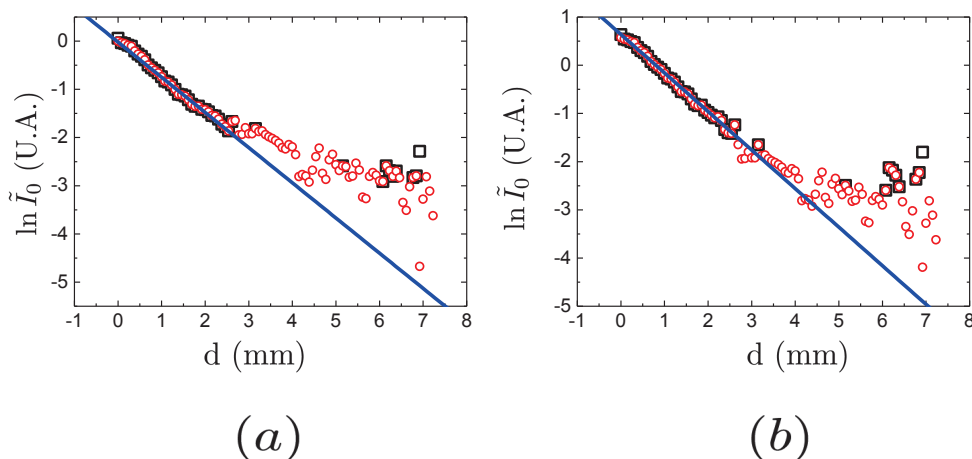


FIGURE 4.29 –  $\ln(\tilde{I}_0)$  en fonction de la distance à la pointe. Les points noirs et rouges (correspondant chacun à un côté de la fracture) se superposent. La ligne continue correspond à l'ajustement des données par une loi exponentielle de paramètre de décroissance  $\chi$  : (a) Pour la première solution de l'équation 4.13, on trouve  $\chi = 1.471$  mm. (b) Pour la seconde solution de l'équation 4.13, on trouve  $\chi = 1.351$  mm.

Elles permettent de déterminer une valeur de  $\chi$  qui est la même de part et d'autre de la fracture. De plus, pour les deux solutions de l'équation 4.13, le paramètre de décroissance est très similaire. Dans l'exemple montré à la figure 4.29, nous trouvons  $\chi = 1.471$  mm pour la première solution et  $\chi = 1.351$  mm dans le cas de la seconde solution. On peut ainsi déterminer de façon non-équivoque la distance caractéristique de décroissance  $\chi$ .

### 4.2.3 Évolution du signal de biréfringence avec la vitesse de pointe de fracture

A la section précédente, nous avons déterminé le paramètre de décroissance  $\chi$  associé au signal de biréfringence de la pointe de fracture. Pour une solution de micelles pontées de paramètres  $\varphi = 9\%$ , et  $R_{surf} = 0.5$ , nous avons calculé  $\chi$  en fonction de la vitesse de propagation sur une plage de vitesses comprises entre 35 mm/s et 355 mm/s. Pour cette plage de vitesse  $\chi$  varie entre 1.41 mm et 0.21 mm. La courbe 4.30, montre l'évolution de cette taille caractéristique avec la vitesse de propagation, les barres d'erreur représentant la différence entre les valeurs de  $\chi$  ajustées pour chacune des solutions de l'équation 4.13.

On peut dégager une tendance forte de la courbe 4.30 : plus les fractures sont lentes, plus l'extension du signal associé à la pointe est importante. Le signal de biréfringence étant associé à l'alignement des micelles sous écoulement, il s'agit d'un indicateur des réorganisations qui s'opèrent dans le matériau sous contrainte. Pour une fracture lente  $\chi$  est grand, le matériau se réorganise donc sur une zone large, a contrario des fractures se propageant plus rapidement.

Le paramètre  $\chi$  permet d'avoir accès à une zone de l'échantillon où des processus de réorganisation s'opèrent. Nous pouvons ainsi définir ce paramètre comme la taille d'une zone de processus autour de la pointe de fracture.

Lorsqu'une fracture est suffisamment rapide, elle ne laisse pas le temps au matériau, sur son temps de passage, de réorganiser sa micro-structure sous l'effet des contraintes locales. Par conséquent, on



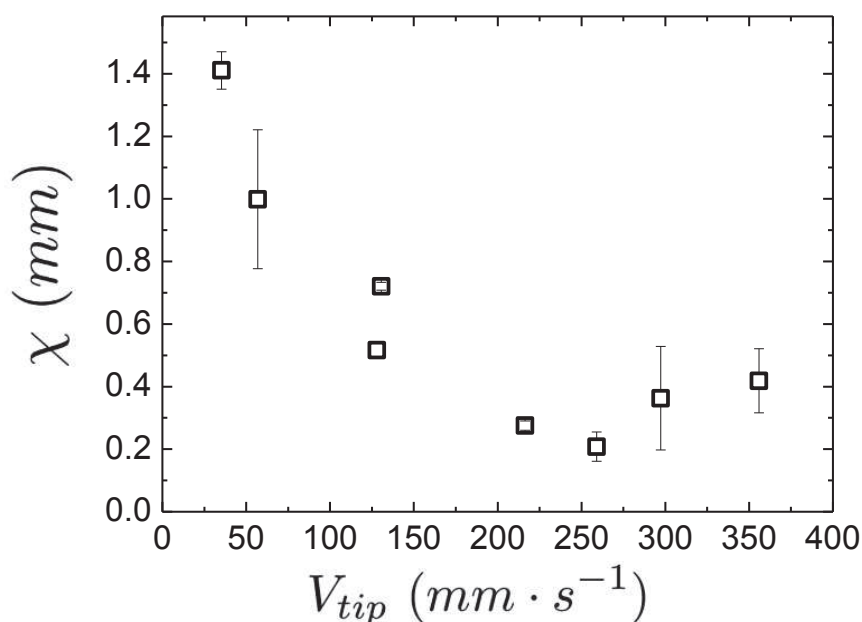


FIGURE 4.30 – Évolution de la taille caractéristique  $\chi$  en fonction de la vitesse de propagation pour une solution de micelles géantes pontée de paramètres :  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$ ,  $\beta = 55\%$ .

peut s'attendre à ce que les processus dissipatifs associés aux changements de micro-structure soient moins forts que ceux associés aux fractures lentes.

Nous sommes tenté de comparer la valeur de  $\chi$  à la valeur de la zone de process que l'on a estimée pour des microémulsions connectées au chapitre 3. Nous avons calculé que cette zone de process  $\mathcal{L}$  augmentait linéairement avec la vitesse de propagation des fracture  $V_{tip}$ . La taille de zone pouvait être estimée ainsi entre  $2 \mu m$  pour les fractures les plus lentes ( $V_{tip} \sim 10 \text{ mm/s}$ ) et  $11 \mu m$  pour les fractures les plus rapides ( $V_{tip} \sim 60 \text{ mm/s}$ ). Nous remarquons, qu'en ordre de grandeur, les valeurs des zones de process, ainsi que leur évolution avec la vitesse, sont très différentes entre les deux systèmes, bien qu'aux grandes vitesses de propagations, la différence entre les deux grandeurs soient moins marqués.

## Résumé

A travers ce chapitre nous avons pu mettre en évidence quelques propriétés de la fracture dans un système dont les propriétés de fracture sont pilotées par la structure du gel. Nous avons mis en évidence différents régimes de fracturation. Quand la structure du gel est proche des microémulsions connectées, le système va se comporter de manière "fragile". Quand les micelles sont suffisamment enchevêtrées les condition d'apparition des fractures vont évoluer indiquant que le gel se réorganise signifiant le caractères "ductile" de ces fractures. Dans ce cas, nous avons pu montrer que la fracture s'accompagne d'une réorganisation du gel autour de la pointe de fracture, sur une zone de taille décroissante avec la vitesse de la fracture. Ces mesures constituent les premières mesures macroscopiques quantitatives de la ductilité de gel transitoire.

## Chapitre 5

# Caractérisation expérimentale d'une instabilité d'écoulement dans des solutions de micelles géantes

Au chapitre précédent, nous avons mis en évidence l'existence d'une instabilité provoquant un écoulement non radial d'une solution de micelles pontées par des polymères téléchéliques, quand le débit d'injection des micelles est suffisamment grand. A travers ce chapitre, nous allons caractériser cette instabilité en utilisant des solutions de micelles pontées en régime enchevêtré. Nous allons étudier des solutions de micelles géantes enchevêtrées, plus simples à mettre en œuvre. Cette instabilité est révélée par l'apparition soudaine de protubérances de gel à l'interface gel/air (figure 5.1(b)) quand on fait croître une tache de gel initialement circulaire (figure 5.1(a)) à fort débit d'injection.

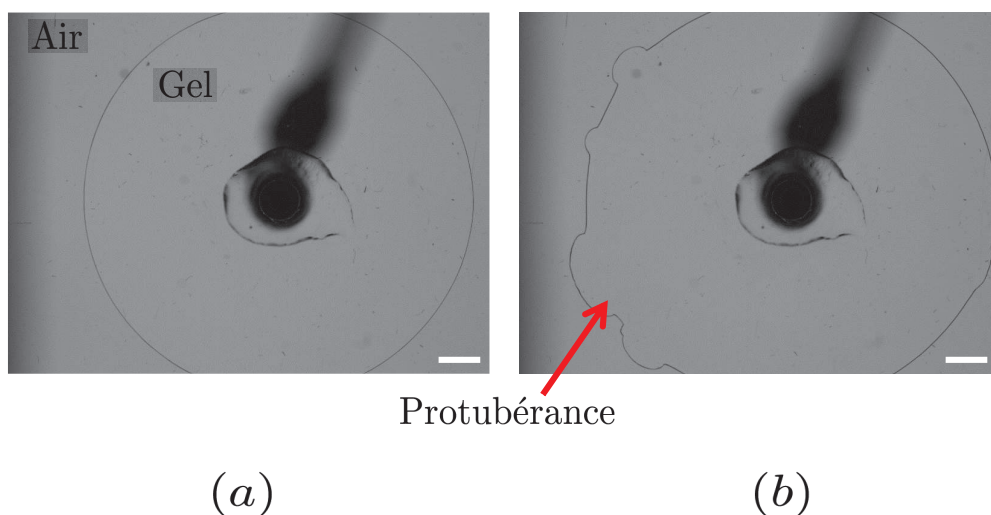


FIGURE 5.1 – Observation d'une perturbation de l'écoulement radial d'une solution de micelles géantes pour  $\phi = 9\%$  et  $R_{surf} = 0.5$ . (a) État initial circulaire (b) Apparition des protubérances 2 s après le début de l'injection à haut débit  $Q_v = 10\text{mL}/\text{min}$ . Barre 6 mm.

Nous avons utilisé deux techniques pour étudier cette instabilité. D'une part, nous avons mesuré la biréfringence du gel sous écoulement pour observer les motifs de biréfringence liés à l'instabilité. Nous avons également dispersé des particules dans le gel, pour mesurer les champs des déplacements du gel.

Nous commençons par décrire de façon qualitative l'apparition et la croissance des motifs de l'instabilité avant de décrire de façon quantitative l'instabilité en étudiant la variation du débit pendant

l'instabilité et la vitesse de propagation de l'instabilité.

## 5.1 Mise en évidence et description qualitative de l'instabilité

Au cours des expériences du chapitre 4 sur des micelles pontées, nous avons observé un comportement singulier du gel sous écoulement. Lors du démarrage de l'injection d'huile dans le gel par le pousse-seringue, nous observons l'apparition soudaine de déformations de l'interface gel/air. A l'aide d'un système simple de micelles géantes, nous avons réalisé des expériences visant à observer de façon reproductible ce phénomène. Nous avons utilisé un protocole expérimental différent des expériences des chapitres précédents. Nous commençons par former une tache circulaire de gel dans la cellule, qui est laissé ensuite au repos pendant 30 minutes. Au lieu d'injecter de l'huile comme nous procédions auparavant, nous injectons du gel dans lui-même.

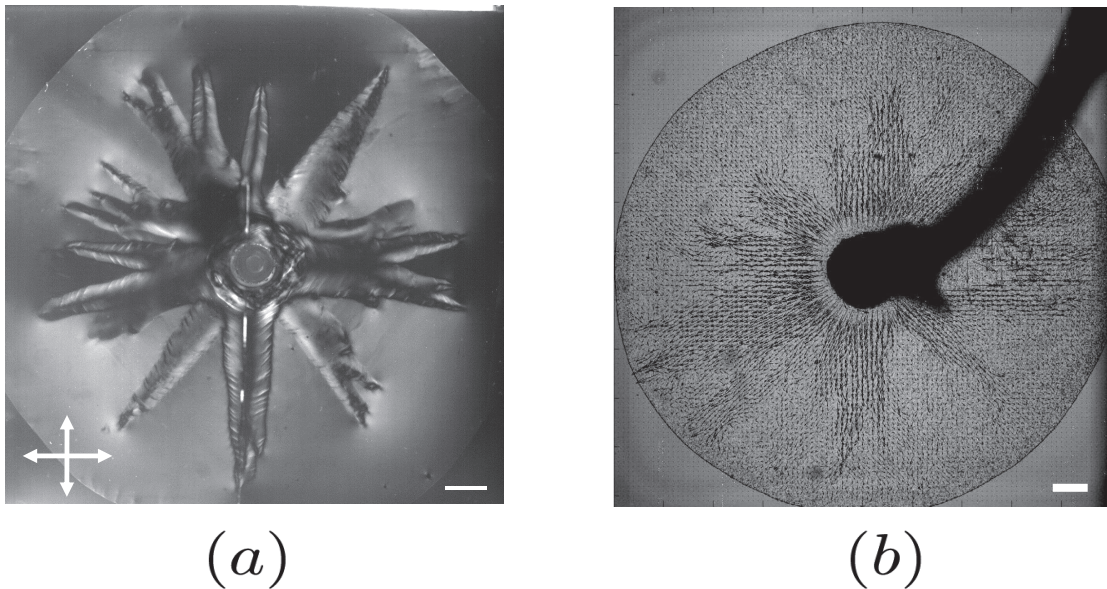


FIGURE 5.2 – Motifs obtenus quand on injecte un solution de micelles géantes ( $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$ ) dans la cellule à un débit de  $Q_v = 40$  mL/min : (a) observés entre polariseur et analyseur croisés. (b) observés en lumière blanche. Nous avons superposés sur l'image le champ de déplacement calculés par PIV. Barres : 6 mm.

### 5.1.1 Description de l'instabilité

Les figures 5.2(a) et (b) montrent un exemple de motifs obtenus pour les deux types d'expériences réalisées : biréfringence (figure 5.2(a)) et PIV (figure 5.2(b)). L'instabilité se manifeste par l'apparition de "branches", de largeur millimétrique et qui possèdent un signal de biréfringence particulier, très différent de celui associé à l'écoulement du gel. Ces branches vont croître depuis le trou d'injection vers les interfaces gel/air. Quand elles arrivent à l'interface avec l'air, ces "branches" déforment l'interface comme on le voit sur la figure 5.1(b). La figure 5.2(b) présente un motif qualitativement similaire à celui de la figure 5.2(a). On y voit des zone pour lesquelles le champ de déplacement est beaucoup plus intense.

La figure 5.3 présente une succession d'images montrant le déroulement typique d'une expérience sous polariseurs croisés. La propagation des branches biréfringentes est très rapide, pour un débit de

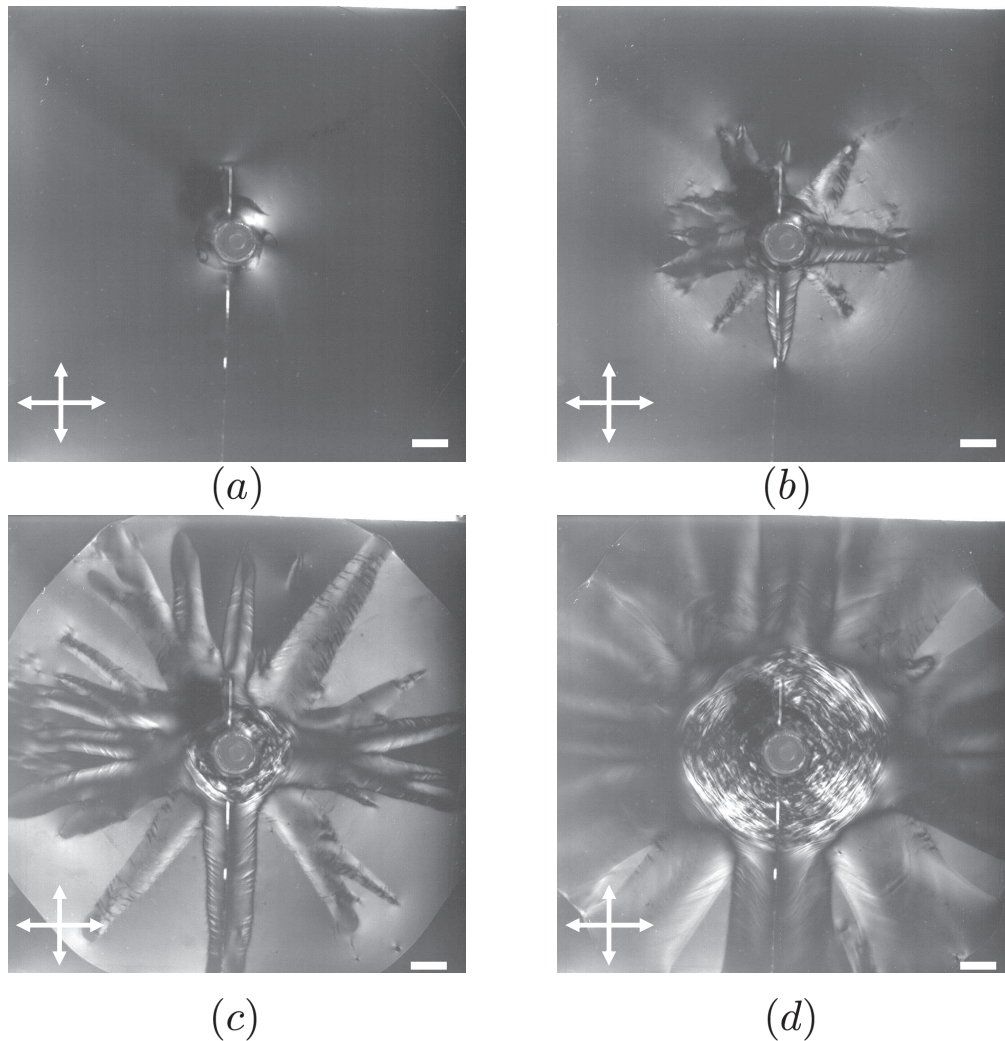


FIGURE 5.3 – Succession d'images montrant l'apparition et le développement de l'instabilité en branches. On observe : (a) le signal de biréfringence lié à l'écoulement avant l'apparition des branches (croix de Malte, voir chapitre 4)  $t = 0$  ms. (b)  $t = 106$  ms, Les branches sont en train de se propager dans la cellule. (c)  $t = 200$  ms, quand les branches atteignent l'interface, elles la déforment. (d)  $t = 444$  ms, Une fois que les branches ont atteint l'interface elles s'élargissent, une zone centrale circulaire apparaît, possédant un signal de biréfringence particulier. Les flèches blanches indiquent l'orientation du polariseur et de l'analyseur. Barres : 6 mm.

$Q_v = 40$  mL/s, la durée nécessaire pour qu'une branches rejoigne l'interface gel/air (soit parcourir une distance de 4 cm) est de  $(210 \pm 30)$ ms. Cela donne une vitesse de propagation moyenne de 19 cm/s que l'on peut comparer à la vitesse de Rayleigh :  $\sqrt{G_0/\rho_g} \sim 0.4$  m/s où  $\rho_g$  est la densité du gel. Une fois arrivés à l'interface gel/air, les canaux vont croître latéralement jusqu'à couvrir l'intégralité de la surface du gel. Cette croissance latérale va s'accompagner d'une diminution de l'intensité du signal de biréfringence. Associée à cette diminution, la texture des branches va se modifier devenant plus homogène. Nous remarquons également l'apparition d'un motif particulier au voisinage du point d'injection que l'on observe à différents débits (figure 5.4). Ce motif se caractérise par l'apparition d'une zone quasi-circulaire où l'on observe une alternance de cercles où l'intensité est successivement intense puis faible formant ainsi une structure en "anneaux" à l'intérieur desquels le signal de biréfringence apparaît "désordonné" en comparaison avec les branches où le gel non perturbé. Comme le montre la figure 5.4, cette zone apparaît pour une large gamme de débits : en fonction du débit la structure du signal de biréfringence va être plus ou moins complexe. La figure 5.4(a) montre un exemple d'un tel signal pour un débit faible ( $Q_v = 5$  mL/min) : le motif présente

des zones quasi-circulaires où l'on observe une alternance entre des zones de signal intense et des zones de signal faible. Au fur et à mesure de l'augmentation du débit d'injection, la structure du signal de biréfringence va se complexifier comme le montre la figure 5.4(d). Nous remarquons que ces structures en anneau apparaissent toujours après l'apparition des branches. Ces structures rappellent les turbulences élastiques observées dans des solutions de micelles géantes enchevêtrées similaires à celles que nous avons étudiées ici [41]. Les auteurs ont mis en évidence l'existence d'instabilité élastique reliée à des fluctuations des bandes de cisaillement observées lors d'expériences de rhéologie. Le détail de cette instabilité se trouve dans la section 1.3 du chapitre 1 et le lien avec nos expériences sera discuté à la section 5.3 de ce chapitre.

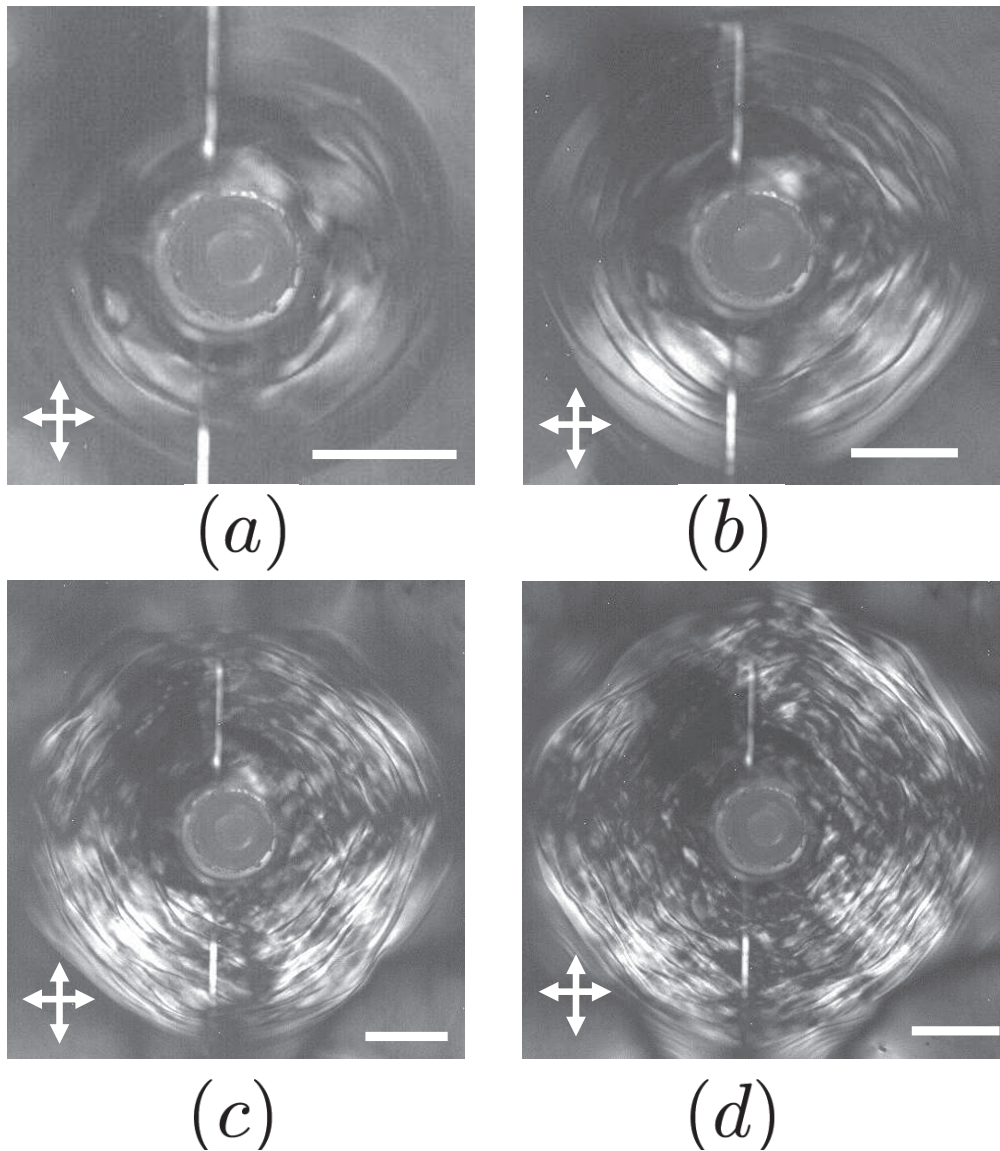


FIGURE 5.4 – Zone circulaire apparaissant après la propagation des branches pour différents débits : (a) 5 mL/min, (b) 10 mL/min, (c) 20 mL/min, (d) 40 mL/min. Barre 6 mm.

Les branches possèdent un signal de biréfringence caractéristique, variant légèrement en fonction de leur orientation par rapport à celle du polariseur ou de l'analyseur. Dans le cas d'une branche orientée parallèlement au polariseur (resp. l'analyseur), une bande sombre se trouve au centre de la branche. De part et d'autre de cette bande nous observons une structure en épi du signal comme nous pouvons l'observer sur la figure 5.5(a) : nous observons une succession de bandes où le gel exhibe un signal non nul entrecoupées de zones fines où le signal est très faible. Dans le cas où la branche est orientée à  $45^\circ$  par rapport au couple polariseur/analyseur, la bande sombre au centre de la branche a disparue. Néanmoins nous retrouvons une symétrie par rapport au centre de la branche où le signal de biréfringence est élevé sur une moitié de la branche tandis qu'il est faible sur l'autre moitié. Dans la zone plus sombre, nous observons un alternance de raies sombres et brillantes rappelant la structure "en épis" observée quand la branche est orientée parallèlement au polariseur ou à l'analyseur.

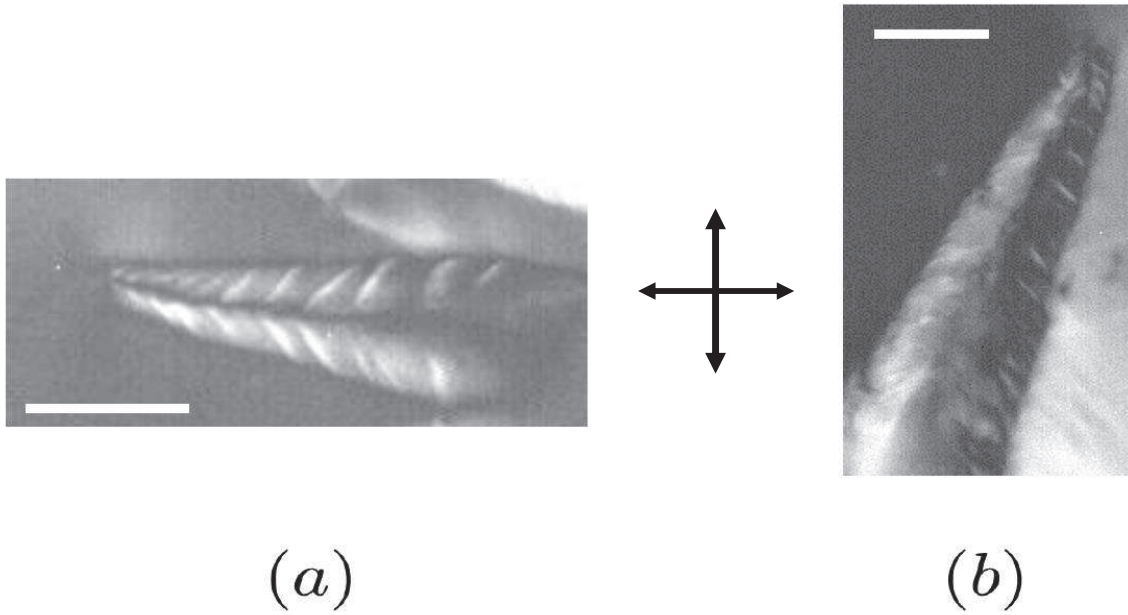


FIGURE 5.5 – Structure du signal de biréfringence associé aux branches observées lors d'une expérience à un débit de  $Q_v = 40$  mL/min. Les flèches indiquent l'orientation du polariseur et de l'analyseur. (a) Signal d'une branche orientée parallèlement au polariseur. (b) Signal d'une branche orientée à  $45^\circ$  du polariseur. Barre 6 mm.

### 5.1.2 Influence du débit et des paramètres physico-chimiques sur le déclenchement de l'instabilité

Pour une solution de micelles géantes de paramètres  $\phi = 9$  et  $R_{surf} = 0.5$  possédant un module élastique  $G_0 = 160$  Pa et un temps de relaxation  $\tau = 0.32$  s, nous notons l'apparition de cette instabilité à partir d'un débit d'injection critique  $Q_v^C = (3 \pm 0.5)$  mL/min. Par conservation du débit, nous pouvons définir le taux de cisaillement à l'entrée de la cellule :

$$\dot{\gamma} \approx \frac{V_{gel}(r=0)}{e} = \frac{Q_v}{2\pi r_0 e^2} \quad (5.1)$$

Où  $Q_v$  est le débit d'injection,  $r_0$  le rayon du trou d'injection, et  $e$  l'épaisseur de la cellule. Pour ce gel, le taux de cisaillement auquel nous commençons à observer l'instabilité à l'entrée de la cellule est donc :  $\dot{\gamma} = (11 \pm 2)$  s $^{-1}$ . Nous pouvons comparer cette valeur au temps de relaxation du fluide :  $\tau = 0.32$  s. Le produit du taux de cisaillement calculé ci-dessus et du temps de relaxation vaut

$\dot{\gamma}\tau = 4.16$ , cela nous indique que l'instabilité apparaît dans le régime où l'on s'attend à observer des bandes de cisaillements, comme le confirme la courbe d'écoulement (figure 5.6).

En faisant varier la composition ( $\phi$  et  $R_{surf}$ ) de l'échantillon, le seuil de déclenchement de l'instabilité change. Pour une solution de micelles géantes de composition ( $\phi = 10\%$  et  $R_{surf} = 0.4$ ), pour laquelle le module de cisaillement vaut  $G_0 = 150$  Pa et le temps de relaxation  $\tau = 0.3$  s, l'instabilité apparaît pour un débit critique de  $Q_v^C = (4.5 \pm 0.5)$  mL/min. Pour des solutions de micelles, de composition  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.4$  et  $[\text{NaCl}] = 0.1\text{M}$  et  $0.2\text{M}$ , nous n'avons observé aucune instabilité sur toute la gamme de débit accessible par le pousse seringue. On en conclut que la viscoélasticité de la solution de micelles géantes semble contrôler l'apparition de cette instabilité. Néanmoins, l'étude quantitative de l'influence de la composition sur l'apparition de l'instabilité n'a pas pu être traitée ici et pourra faire l'objet d'études ultérieures.

La description et l'analyse de cette instabilité dans la suite de ce chapitre a été effectuée pour un échantillon de composition :  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$  et  $[\text{NaCl}] = 0.5\text{M}$ .

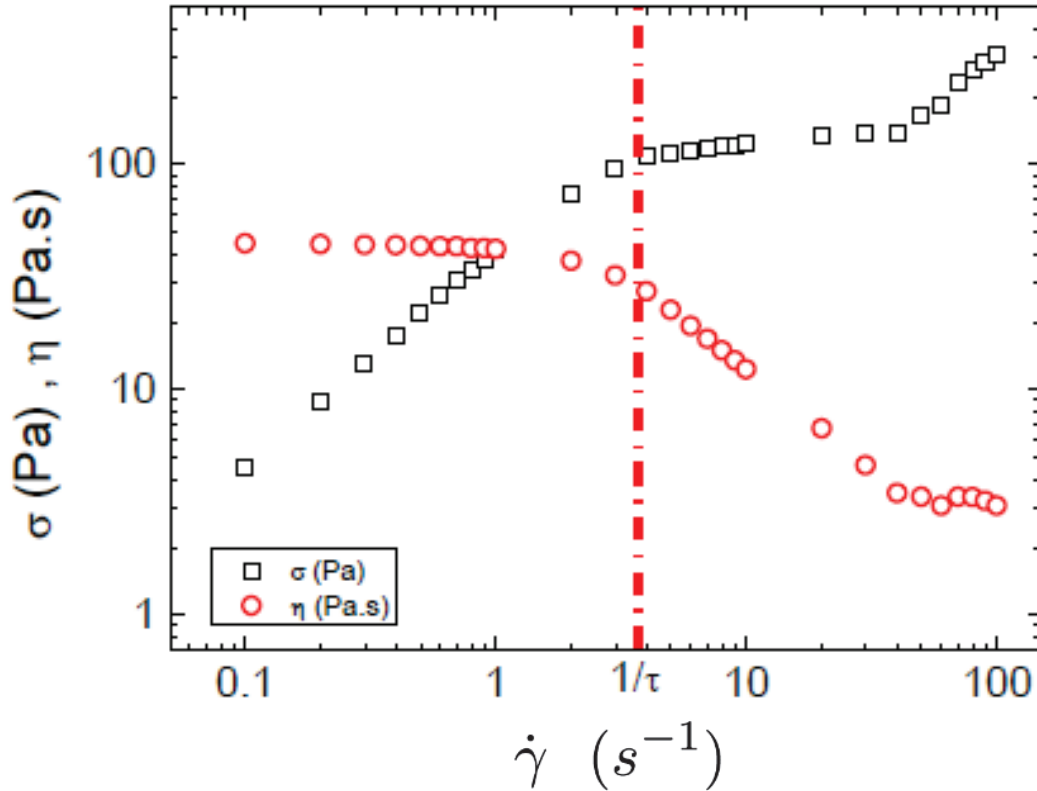


FIGURE 5.6 – Courbe d'écoulement : contrainte  $\sigma$  ( $\square$ ) et viscosité  $\eta$  ( $\circ$ ) en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de micelles géantes de paramètres  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$ . La ligne verticale représente le taux de cisaillement critique  $1/\tau$

### 5.1.3 Relations entre l'instabilité et l'écoulement en bandes de cisaillement

Comme précisé au chapitre 2, nous pouvons injecter les micelles au débit souhaité (dans la gamme  $Q_v = 0.1$  mL/min- $Q_v = 52$  mL/min) car elles sont rhéofluidifiantes. Des expériences avec de l'huile de silicone possédant une viscosité au repos identique à celle des micelles géantes ont montré que

nous ne pouvions pas atteindre de tels débits de consigne pour un fluide newtonien de viscosité trop élevée. Les micelles géantes présentent des propriétés rhéologiques non linéaires particulières. Au delà d'un seuil de taux de cisaillement, des bandes de cisaillement se forment dans le gel. Ces bandes de cisaillement, présentées au chapitre 1, correspondent à l'apparition d'un écoulement hétérogène associé à des zones sous écoulement où l'orientation et la viscosité des micelles est différentes dans les deux bandes [2].

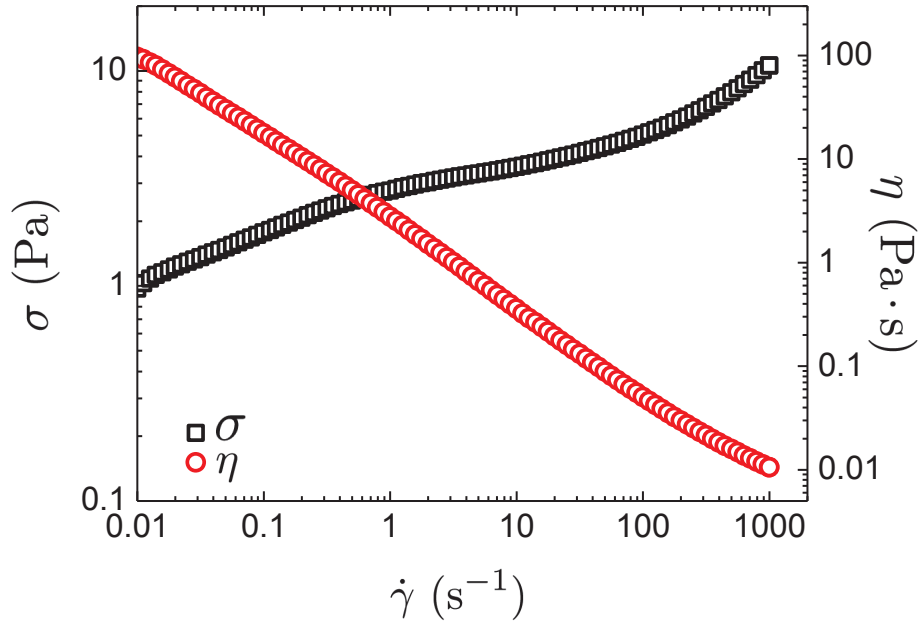


FIGURE 5.7 – Courbe d'écoulement d'une solution de xanthane. ( $\circ$ ) viscosité  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . ( $\square$ ) contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ .

Afin de vérifier si l'instabilité observée lors de nos expériences est liée ou non à la formation de ces bandes de cisaillement ou tout du moins à la présence d'un écoulement hétérogène, nous avons décidé de réaliser les mêmes expériences en utilisant un autre fluide, rhéofluidifiant, mais n'exhibant pas de bandes de cisaillement. La courbe 5.7 représente la courbe d'écoulement d'une solution de xanthane. Nous avons choisi de travailler pour une solution de xanthane de concentration 3 g/L, le solvant étant une solution d'eau salée ( $[\text{NaCl}] = 1 \text{ g/L}$ ). Ce fluide, rhéofluidifiant (comme le montre la figure 5.7), est également biréfringent sous écoulement, ce qui va nous permettre de vérifier si nous observons des branches se former.

En comparaison des solutions de micelles géantes que nous avons étudiées, le signal de biréfringence mesuré est très faible (figure 5.8). Nous avons pu tester toute la gamme de débits accessibles par le pousse seringue, soit des débits compris entre  $Q_v = 1 \text{ mL/min}$  et  $Q_v = 52 \text{ mL/min}$ , cela revient à examiner une gamme de taux de cisaillement compris entre  $4 \text{ s}^{-1}$  et  $184 \text{ s}^{-1}$ . Pour cette gamme de taux de cisaillement, le fluide est très rhéofluidifiant, la viscosité  $\eta$  chutant d'environ 1.5 ordre de grandeur. Pourtant, sur toute la gamme de taux cisaillement étudiés, aucune instabilité n'est apparue. Nous pouvons ainsi conclure que l'apparition des branches n'est vraisemblablement pas due au seul caractère rhéofluidifiant du gel.



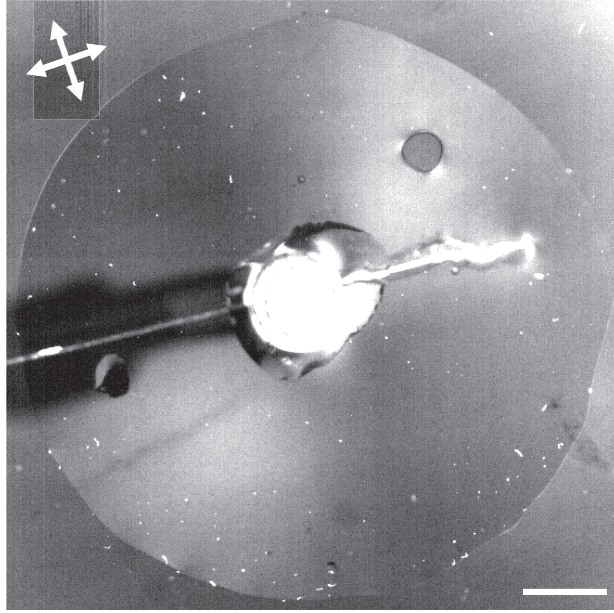


FIGURE 5.8 – Motifs de biréfringence obtenus pour une solution de xanthane injectée à un débit de  $Q_v = 40$  mL/min. Barre : 6 mm.

## 5.2 Caractérisation quantitative de l'instabilité

### 5.2.1 Étude de la biréfringence des micelles sous écoulement.

#### Comportement des branches avec le débit.

Toutes les branches n'apparaissent pas en même temps, nous observons plusieurs "séries" de branches (nous observons généralement deux séries de branches) qui apparaissent successivement. Pouvant distinguer les "contours" de ces branches, nous pouvons estimer leur nombre au cours du temps pour différents débits.

Pour ces différentes expériences, nous avons mesuré le nombre maximal de branches observées  $N_{branches}$ . La figure 5.9, montre l'évolution de cette grandeur avec le débit d'injection  $Q_v$

Comme le montre la figure 5.9, le nombre maximal de branches croît avec le débit d'injection passant de 8 branches pour  $Q_v = 3.5$  mL/min à 32 branches pour  $Q_v = 40$  mL/min. Nous avons ajusté les données expérimentales par la loi critique :

$$N_{max} = A(Q_v - B)^C \quad (5.2)$$

Où  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont trois paramètres d'ajustement. Le paramètre  $B$  représente le débit critique d'apparition de l'instabilité. L'ajustement des données donne :  $B = 2.89$  mL/min à comparer avec la valeur du débit critique mesuré :  $Q_v^C = (3 \pm 0.5)$  mL/min. L'exposant  $C$  vaut  $C = 0.32$ . On montre ainsi l'existence d'une relation empirique entre le nombre maximum de branches observées et le débit d'injection.

En comptant le nombre de branches, nous avons remarqué à plusieurs reprises des branches qui semblent apparaître à l'intérieur d'autres branches (un exemple est présenté à la figure 5.10). Cela suggère que les branches sont des objets d'épaisseur finie, inférieure à l'épaisseur de la cellule. L'apparition de ces branches s'effectuerait ainsi à différentes épaisseurs. L'écoulement avant l'apparition de l'instabilité étant un écoulement de Poiseuille radial, le taux de cisaillement est maximal à l'interface entre le gel et les plaques de verre. En étudiant l'écoulement de micelles géantes dans des canaux micro-fluidiques [98], lorsque l'on applique une pression suffisamment forte des bandes de cisaillement se forment. Il a été montré que ces bandes sont localisées à la surface des canaux micro-fluidiques. Si l'on suppose que les branches que l'on observe dans nos expériences sont reliées à un écoulement en

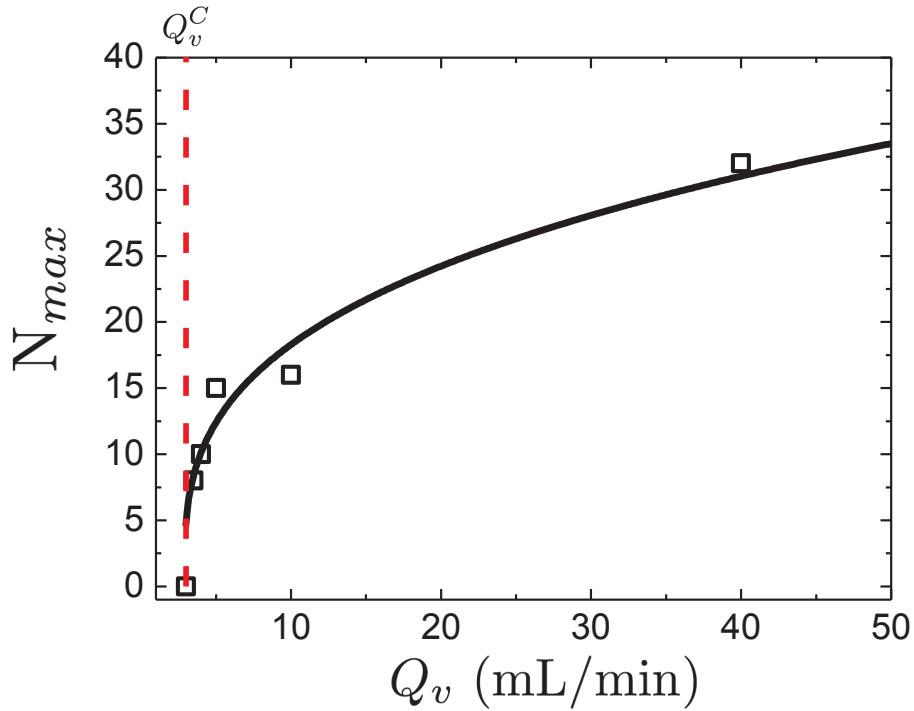


FIGURE 5.9 – (□) Nombre maximal de branches en fonction du débit d'injection  $Q_v$  pour une solution de micelles géantes de composition  $\phi = 9\%$ ,  $R_{surf} = 0.5$  et  $[\text{NaCl}] = 0.5\text{M}$ . Les pointillés rouges correspondent au débit critique de déclenchement de l'instabilité :  $Q_v^C = (3 \pm 0.5)$  mL/min. La ligne noire est l'ajustement des données par la relation 5.2 définie dans le texte.

bandes de cisaillement, alors elles devraient se propager le long de l'interface gel/verre. Nous sommes donc tentés de formuler l'hypothèse de branches localisées aux voisinage des plaques de verre.

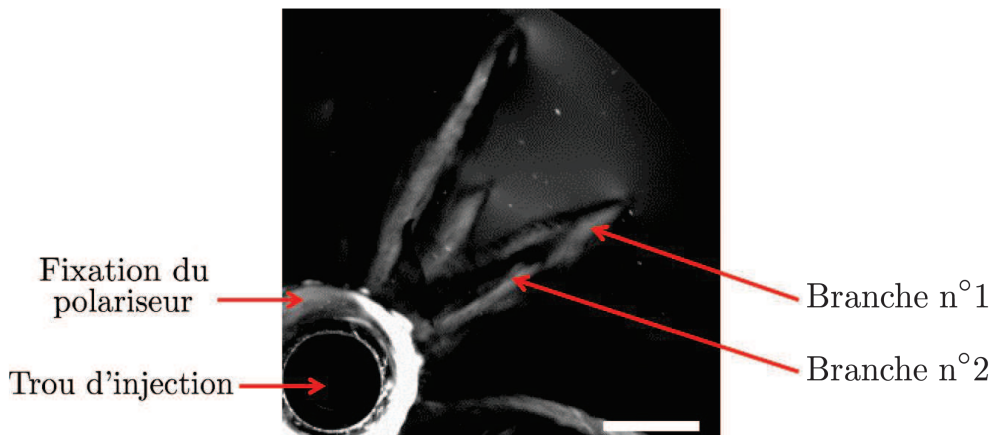


FIGURE 5.10 – Propagation de branches dans une solution de micelles géantes de paramètres  $\phi = 9\%$  et  $R_{surf} = 0.5$  à un débit de 5 mL/min. Nous remarquons l'existence de branches semblant se propager les unes sur les autres. Barre 6 mm.

## Vitesse de propagation des branches

A l'aide des mesures de biréfringence, nous avons déterminé les positions successives de la pointe des branches en fonction du temps. La courbe 5.11 montre l'évolution de la vitesse d'avancée des branches en fonction du temps pour deux débits, respectivement de 5 mL/min (figure 5.11(a)) et 10 mL/min (figure 5.11(b)). Nous rappelons que toutes les branches n'apparaissent pas en même temps mais par "vagues" successives. Nous mesurons une première série de branches (symboles pleins de la figure 5.11, chaque symbole correspondant à une branche) dont la vitesse de propagation, sensiblement constante au cours du temps, vaut  $\langle V_{tip} \rangle = (27 \pm 12)$  mm/s pour un débit de 5 mL/min et  $\langle V_{tip} \rangle = (32 \pm 14)$  mm/s pour un débit de 10 mL/min. La vitesse moyenne des branches qui apparaissent au début de l'expérience semble donc dépendre peu du débit d'injection, ce que l'on peut confirmer en représentant l'évolution de la vitesse d'avancée pour les deux débits d'injection sur une même courbe (figure 5.12).

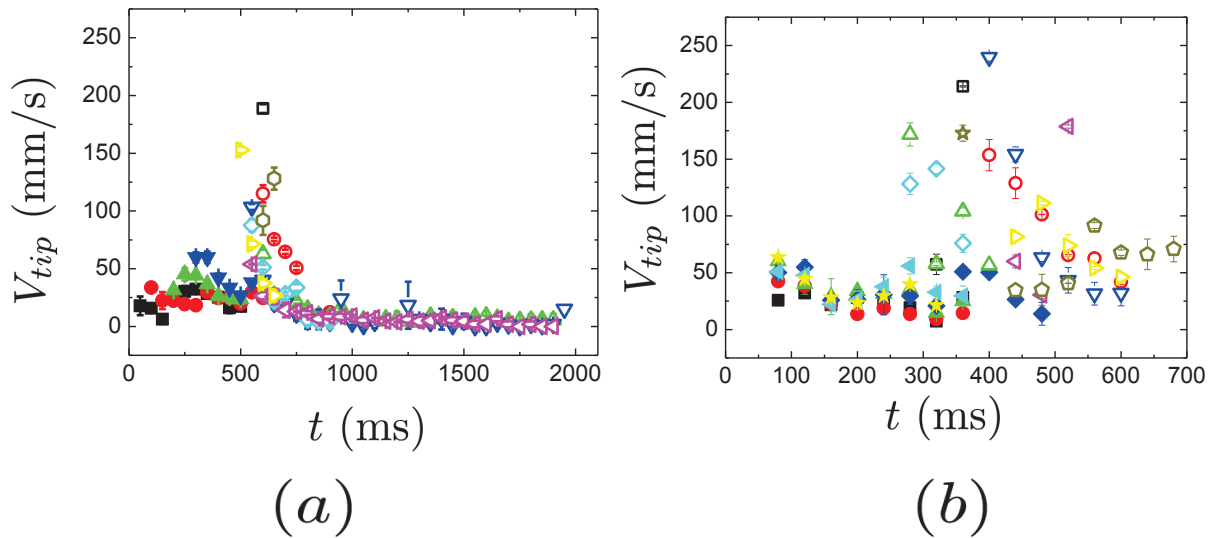


FIGURE 5.11 – Évolution temporelle de la vitesse d'avancée de la pointe des branches pour différents débits : (a) pour un débit de 5 mL/min, (b) pour un débit de 10 mL/min. Les symboles pleins correspondent à la première série de branches apparaissant dans la cellule. Les symboles vides correspondent à une seconde génération de branches se superposant aux premières.

Les branches issues de la seconde génération de branches (symboles vides de la figure 5.11, chaque symbole correspondant à une branche) apparaissent superposées à celles apparues au début de l'expérience. Lorsqu'elles apparaissent, ces dernières se propagent à des vitesses très supérieures aux premières. La vitesse associée à cette deuxième génération de branches va décroître très rapidement pour se stabiliser à une valeur constante ( $\langle V_{tip} \rangle = (5 \pm 3)$  mm/s pour un débit de 5 mL/min).

Sur la figure 5.11, nous avons représenté par différents symboles la vitesse des différentes branches observées pour une expérience donnée. Nous observons ainsi que la vitesse d'avancée de la pointe est la même pour toutes les branches. La vitesse des branches ne semble donc pas dépendre de l'endroit où elles se propagent dans la cellule. Cela pourrait indiquer que la vitesse soit liée à la structure du gel en écoulement dans la cellule. Avant l'apparition des branches, l'écoulement est homogène, la structure du gel est donc la même partout dans la cellule. L'apparition des branches va grandement modifier le signal de biréfringence observé. Néanmoins, la vitesse de propagation de l'instabilité est indépendante de l'orientation des branches. On pourrait alors supposer que cette vitesse de propagation décrit la vitesse à laquelle l'orientation des micelles se modifie sous l'influence de l'instabilité.

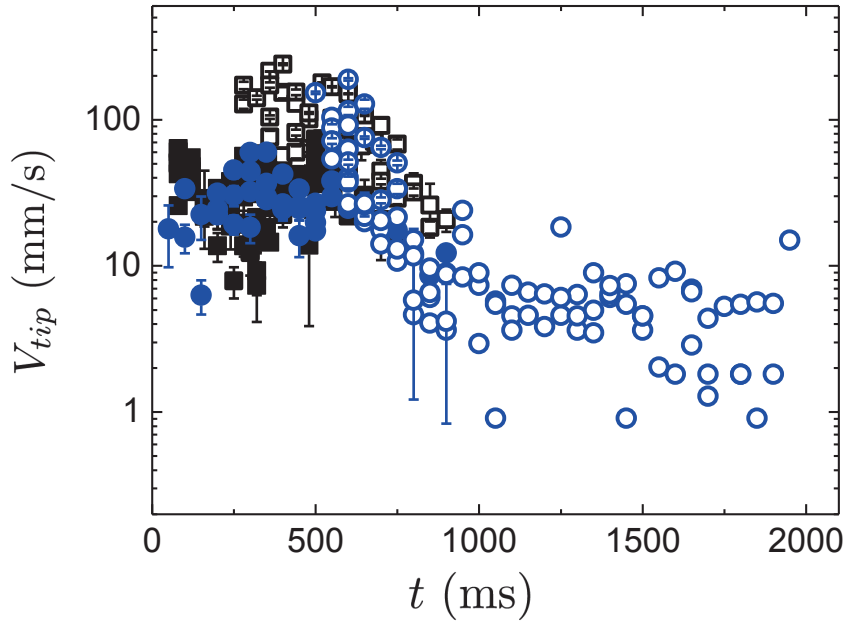


FIGURE 5.12 – Évolution de la vitesse d’avancée de la pointe des branches d’instabilité en fonction du temps pour différents débits. (■ , □) correspondent à un débit d’injection de  $Q_v = 10$  mL/min, (● , ○) correspondent à un débit d’injection de  $Q_v = 5$  mL/min.

La seconde génération de branches suit un comportement identique, le saut de vitesse observé pouvant correspondre au fait que les branches apparaissent alors que l’orientation des micelles a déjà été modifiée de façon importante par la première vague de branches (diminuant la viscosité de la solution de manière importante). La vitesse des branches pourrait donc dépendre uniquement de la structure du gel.

La mesure de la vitesse de pointe de branches a été répétée sur deux expériences réalisées à un débit de  $Q_v = 10$  mL/min. La figure 5.13 représente la vitesse de propagation de la pointe de branches mesurée lors de ces deux expériences. On remarque que les courbes associées aux deux mesures donnent des vitesses de propagation très voisines indiquant qu’il n’existe pas de différence majeure entre les deux expériences.

Cette étude de la biréfringence associée à l’apparition des branches nous a permis de supposer que les branches se propagent certainement aux interfaces gel/verre de la cellule parce que l’on observe que des branches qui apparaissent "superposées". En étudiant leur vitesse de propagation, nous avons montré que les branches apparaissaient par vagues successives, et que, pour une vague donnée, toutes les branches se propagent à la même vitesse. La vitesse de propagation des branches semble donc indépendante de l’orientation de celles-ci. Enfin, dans le cas de deux débits différents, nous n’avons observé qu’une faible différence dans les vitesses observées, ce qui semble indiquer que la propagation des branches ne dépend pas significativement du débit d’injection du gel. Néanmoins, les débits étudiés, bien que différents, présentent toutes deux un nombre maximal de branches identique. Pour aller plus loin dans l’analyse, il faudrait comparer deux expériences possédant un nombre de branches très différents. Nous avons observés certaines branches se propageant à des vitesses très élevées, voisines de la vitesse de Rayleigh. On pourrait alors s’interroger si cette vitesse correspond bien à une vitesse d’écoulement, des vitesses aussi élevées semblant peu compatibles avec un écoulement.

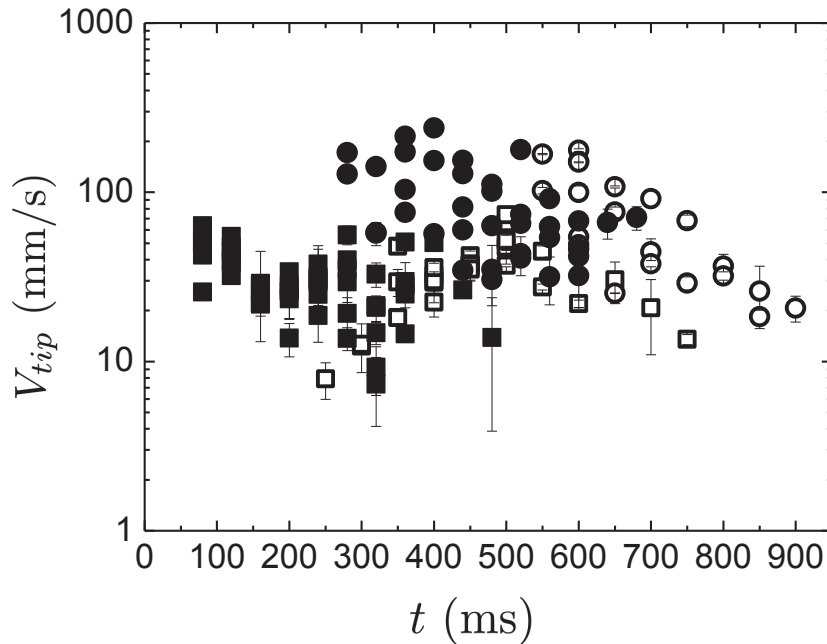


FIGURE 5.13 – Vitesse de propagation des différentes branches observées lors de deux expériences distinctes, réalisées à un débit de 10 mL/min. (■, ●) Première expérience. (□, ○) Seconde expérience.

Nous allons maintenant compléter cette étude en réalisant une étude des champs de déplacement dans le gel.

## 5.2.2 Détermination des champs de déplacement du gel.

### Point de nucléation de l'instabilité.

Comme précisé au début de ce chapitre, l'instabilité consiste en l'apparition, peu après le début de l'injection du gel dans lui-même, de branches se propageant depuis le point d'injection vers l'interface gel/air. Au paragraphe précédent, nous avons émis l'hypothèse que ces branches se propagent proche des surfaces de verre. Nous allons tenter de déterminer l'origine de ces branches. En particulier, nous allons déterminer si l'instabilité est liée à "l'histoire" de l'écoulement, c'est-à-dire à l'écoulement du gel dans le tuyau d'injection.

Pour ce faire, nous avons réalisé l'expérience suivante : au lieu d'injecter le gel dans lui-même, nous allons injecter le gel avec les traceurs utilisés pour réaliser les mesures de PIV. Nous avons vérifié que les propriétés rhéologiques des deux systèmes sont identiques à l'erreur expérimentale près. Nous préparons l'expérience de façon à avoir une tache de gel sans particules de rayon initial 9.6 mm. Nous commençons par injecter lentement (c'est-à-dire suffisamment lentement pour être en dessous du seuil critique de déclenchement de l'instabilité) le gel avec particules jusqu'à formation d'une tache de gel avec particules (de rayon 13.7 mm) dans le gel sans particule comme montré sur le schéma 5.14.

Nous commençons l'expérience après avoir laissé les deux gels au repos pendant 30 min. Afin de pouvoir visualiser aussi bien les particules qu'une partie du signal de biréfringence, nous avons équipé la cellule d'un polariseur et d'un analyseur dans une position semi-croisée (la différence d'orientation entre le polariseur et l'analyseur a été fixée à 45 ° environ). La figure 5.15 montre le motif obtenu

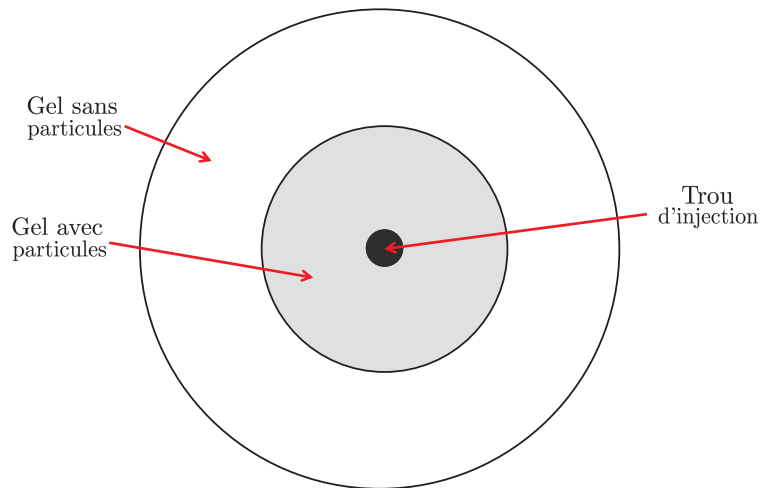


FIGURE 5.14 – Schéma de la configuration expérimentale initiale pour une expérience d'injection d'un gel avec particules dans un gel sans particules.

pendant l'expérience.

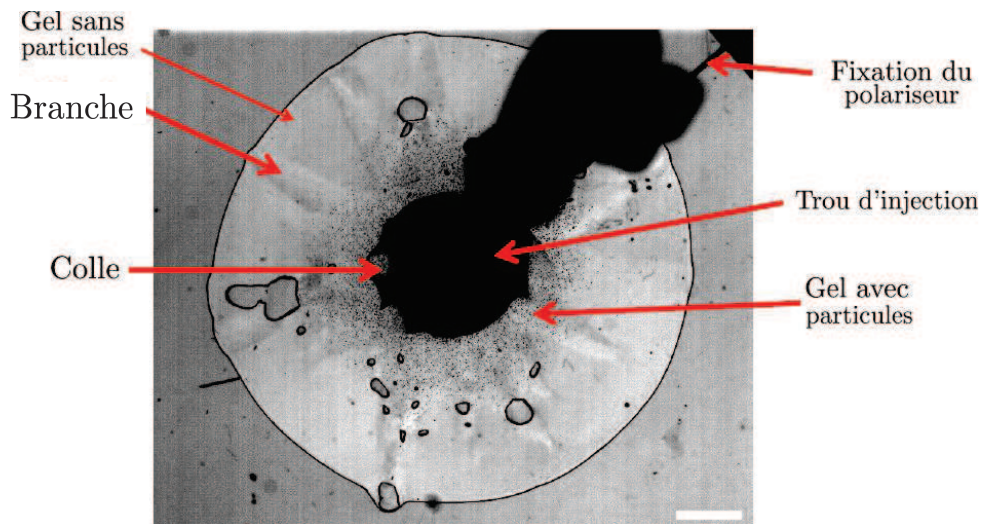


FIGURE 5.15 – Injection d'un gel avec particules dans un gel sans particules. On note l'apparition de branches de gel sans particule. Barre 6 mm.

Dans le cas où l'instabilité serait provoquée par le comportement du gel dans le tuyau d'injection, comme le gel dans ce tuyau contient des particules, nous devrions voir des branches de gel avec particules se propager dans la cellule. Or, comme on le voit sur la figure 5.15, nous observons des branches dans lesquels nous ne voyons pas de particule. L'instabilité ne semble donc pas prendre naissance dans le tuyau d'injection.

Dans la figure 5.16 (qui est une expérience similaire à l'expérience précédente mais sans polariseurs), nous voyons des branches qui se propagent en partant du point d'injection vers l'interface gel/air. Nous voyons également, l'interface entre gel avec particules et gel sans particule qui est déformée au passage de la branche sans pour autant que l'on retrouve des particules transportées dans le gel sans particule. Pour expliquer ces effets, nous pouvons envisager les branches comme des ondes de biréfringence se propageant dans la cellule, le déplacement du gel venant dans un second temps.

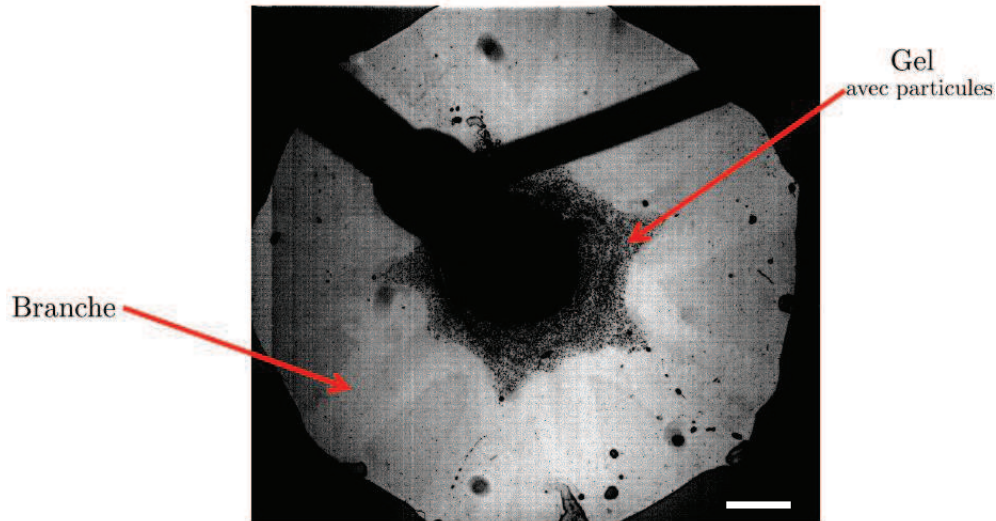


FIGURE 5.16 – Injection d'un gel avec particules dans un gel sans particules. On note l'apparition de branches de gel sans particule. Barre 6 mm.

Néanmoins, les interfaces gel/air sont perturbées par le passage des branches, indiquant qu'il y a forcément un transport de matière. Les branches ne peuvent donc pas être uniquement dues à des ondes de biréfringence. Nous pourrions également envisager les branches comme étant liées à du glissement aux parois de verre, ce qui provoquerait un déplacement "en bloc" de la matière contenu dans une branche comme le montre le schéma 5.17. Dans le cas de figure (que l'on peut comparer au motif expérimental observé à la figure 5.16), nous pourrions alors justifier la non présence des particules dans une branche bien que nous soyons en train d'injecter du gel avec des particules. Néanmoins les mesures de biréfringence ont montré qu'il existait un fort signal de biréfringence, associé aux branches, signifiant que l'on oriente les micelles ce qui laisse supposer l'existence d'un écoulement. Le glissement seul n'est donc pas suffisant pour expliquer l'existence des branches.

La nature des branches reste donc peu claires à ce stade. Nous avons donc tenter de mesurer via PIV les champs de déplacements associés à l'instabilité.

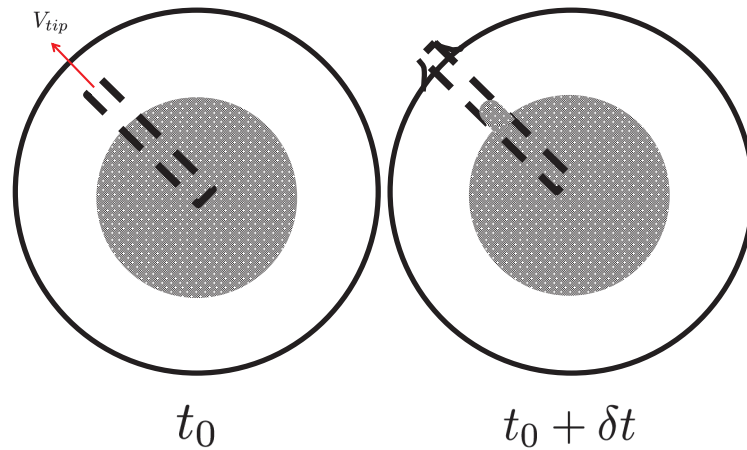


FIGURE 5.17 – Schéma d’un scénario de glissement dans la cellule. L’instabilité provoque le glissement d’un bloc de gel (délimité par le rectangle en pointillé noir) entre  $t_0$  et  $t_0 + \delta t$  ce qui provoque une déformation de l’interface air/gel ainsi que de l’interface gel sans particules/gel avec particules.

### Déplacement du gel lors de l’instabilité.

En dispersant des particules traçantes dans le gel, nous sommes en mesure de reconstruire par PIV les champs de déplacement du gel. Nous avons réalisé des mesures du champ de déplacement tout au long d’une expérience effectuée à un débit de 20 mL/min. Les figures 5.18 montrent les champs reconstitués de cette expérience respectivement pendant (5.18(a)) et après (5.18(b)) l’écoulement associé à la présence des branches. Le champ des déplacements avant l’apparition des branches est un champ radial. Pendant l’apparition de l’instabilité, nous notons l’apparition de l’écoulement associé aux branches par la brisure de la symétrie radiale. Le point inattendu correspond à ce que nous observons à l’issue de l’expérience (figure 5.18(b)) : Comme le montre cette figure, l’écoulement après le passage de l’instabilité semble redevenir isotrope.



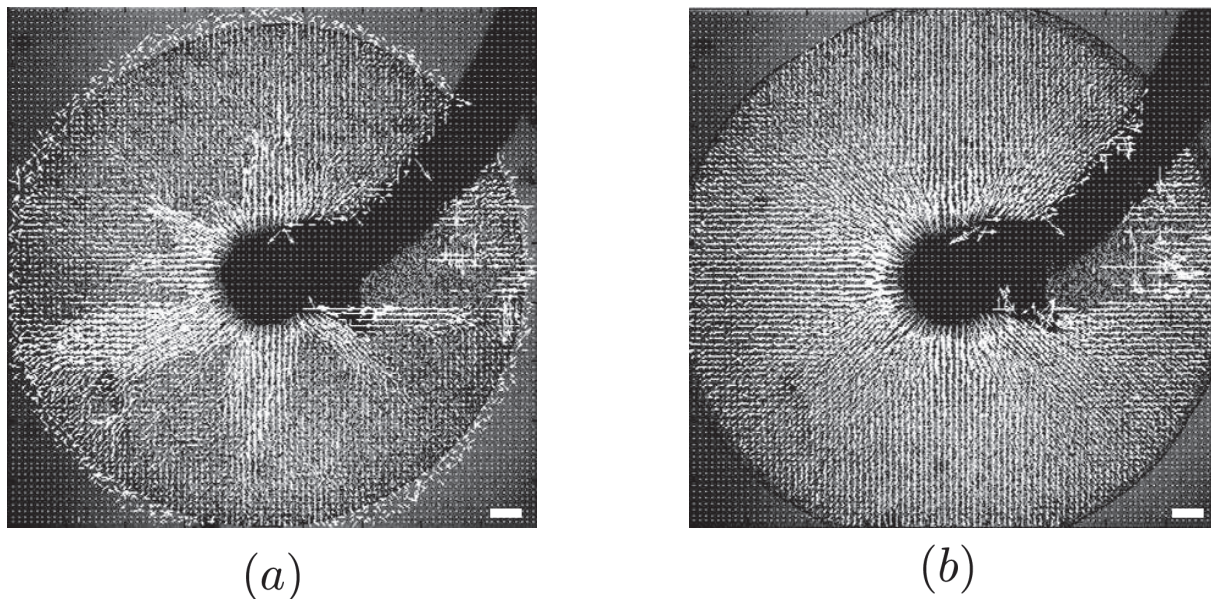


FIGURE 5.18 – Champ de déplacement observé lors d’une expérience à un débit de 20 mL/min. (a) Pendant la propagation de l’instabilité. (b) Après que les branches se soient propagées sur toute la largeur de la tache de gel. Barres : 6 mm.

Nous mesurons, à une distance donnée de la pointe, l’évolution angulaire du déplacement à l’aide d’une méthode similaire à celle que nous avons utilisée au chapitre 3.

La figure 5.19 nous présente l’évolution angulaire de la composante radiale du champ de vitesse  $V_r$  à trois instants distincts d’une expérience. Avant l’apparition de l’instabilité, nous remarquons que la composante radiale du champ de vitesse ne dépend pas de  $\theta$  comme attendu pour un écoulement radial. La moyenne angulaire de la vitesse d’écoulement est de :  $\langle V_r \rangle = (0.49 \pm 0.28)$  mm/s. L’apparition de l’instabilité se caractérise par la perte de cette symétrie angulaire. L’évolution angulaire de  $V_r$  n’est plus constante en fonction de  $\theta$  mais présente des pics, chaque pic étant associé à la présence d’une branche. On remarque que les fluctuations de vitesse autour d’une vitesse moyenne deviennent très importantes :  $\langle V_r \rangle = (4.80 \pm 3.49)$  mm/s. Après le passage de l’instabilité, nous avons remarqué que la composante radiale du champ de vitesse redevenait indépendante de  $\theta$  indiquant le retour d’un écoulement isotrope. Les fluctuations de vitesse autour de la moyenne angulaire redeviennent plus faibles :  $\langle V_r \rangle = (6.83 \pm 0.88)$  mm/s.

En repérant, en coordonnées polaires, la position d’une des branches, nous allons définir une ligne d’analyse orientée dans la même direction que la branche. Nous allons mesurer les déplacements le long de cette ligne à différents moments de l’expérience respectivement avant l’apparition de l’instabilité, pendant la propagation de la branche, et après que la branche ne se soit propagée sur toute la largeur de la tache de gel. Les figures 5.20 et 5.21 nous montrent à un instant donné l’évolution de la vitesse en fonction de la distance au point d’injection pour deux branches observées lors de deux expériences distinctes réalisées à des débits respectifs de 10 mL/min (figure 5.20) et 20 mL/min (figure 5.21).

Avant et après la propagation de la branche nous remarquons que la vitesse varie comme une loi :  $V_{gel} \propto 1/r$ , compatible avec un écoulement radialement isotrope. En revanche, dans le cas où on suit un canal en train de se propager, nous mesurons une vitesse indépendante de  $r$  tant que l’on se situe à l’intérieur de la branche. Cette vitesse vaut  $V_r^b = (8.43 \pm 0.83)$  mm/s pour un débit de 10 mL/min et  $V_r^b = (9.61 \pm 1.16)$  mm/s dans le cas où le débit d’injection est de 20 mL/min. Au regard de ces

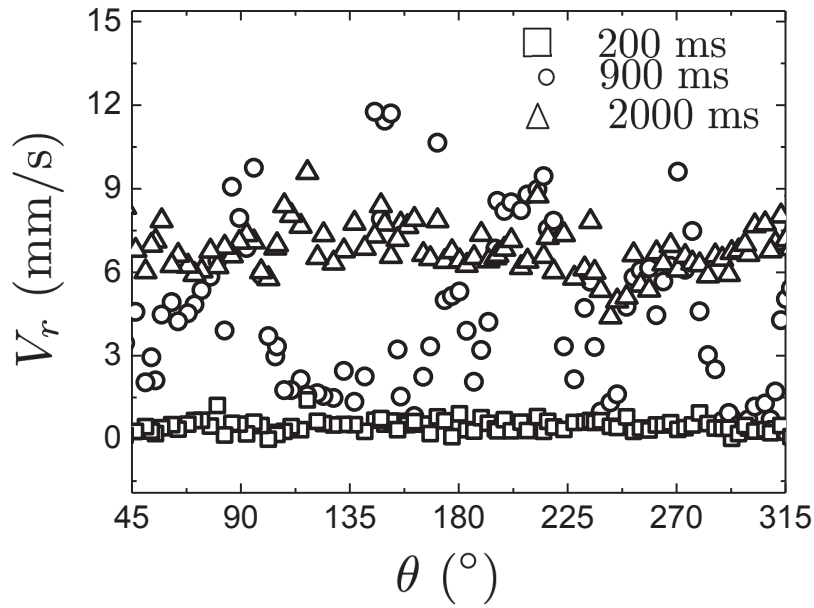


FIGURE 5.19 – Évolution angulaire de la composante radiale  $V_r$  du champ de vitesse à  $r = 14.5$  mm du trou d’injection lors d’une expérience où l’on injecte la solution de micelle à un débit de  $Q_v = 20$  mL/min. Chaque symbole correspond à différents temps respectivement : avant l’apparition de l’instabilité ( $\square$ ), pendant la propagation des branches ( $\circ$ ) et après que les branches se soient propagées sur toute la cellule ( $\triangle$ ). Pour la plage angulaire  $0-45^\circ$  et  $315-360^\circ$ , nous n’avons pas accès aux données à cause de la présence sur l’image du tuyau d’injection.

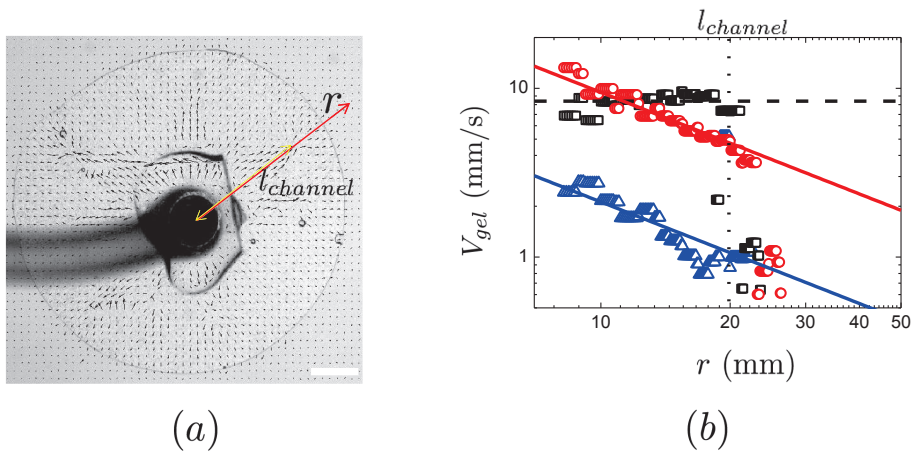


FIGURE 5.20 – (a) visualisation par PIV du champ des déplacements lorsque l’on injecte la solution de micelles à un débit de  $Q_v = 10$  mL/min. L’image est prise pendant la propagation des branches ( $t = 750$  ms). (b) Composante radiale du champ de vitesse mesuré dans la direction symbolisée par la flèche rouge représentée en (a). La mesure a été effectuée à trois reprises : ( $\triangle$ ) avant l’apparition de l’instabilité  $t = 480$  ms, ( $\circ$ ) après la propagation des branches  $t = 1350$  ms, ( $\square$ ) pendant que les branches sont en train de se propager  $t = 750$  ms. La branche considérée ici a une longueur totale  $l_b$  reportée également sur l’image (a). Les lignes représentent l’ajustement des données par une loi en  $1/r$ , les pointillés représentent la moyenne de la vitesse mesurée à l’intérieur d’une branche. Barre 6 mm.

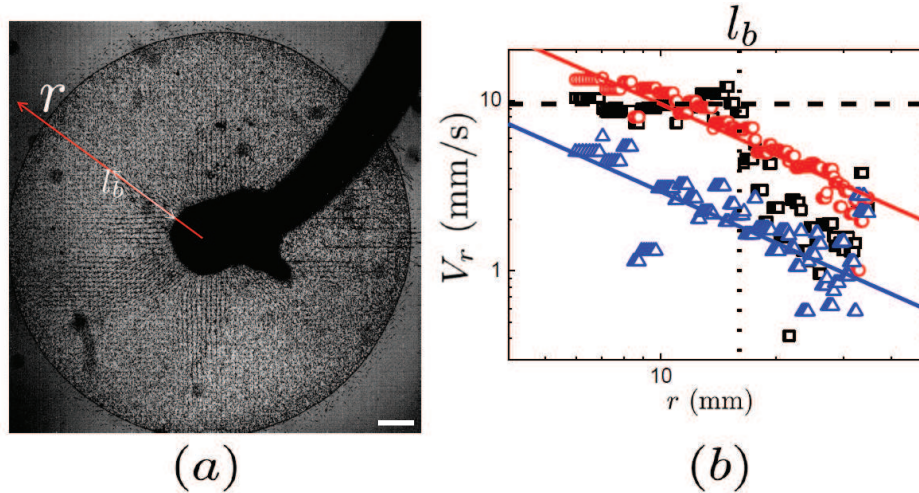


FIGURE 5.21 – (a) visualisation par PIV du champ des déplacements lorsque l’on injecte la solution de micelles à un débit de  $Q_v = 20$  mL/min. L’image est prise pendant la propagation des branches ( $t = 900$  ms). (b) Composante radiale du champ de vitesse mesurée dans la direction symbolisée par la flèche rouge représentée en (a). La mesure a été effectuée à trois reprises : ( $\Delta$ ) avant l’apparition de l’instabilité  $t = 800$  ms, ( $\circ$ ) après la propagation des branches  $t = 2000$  ms, ( $\square$ ) pendant que les branches sont en train de se propager  $t = 900$  ms. La branche considérée ici a une longueur totale  $l_b$  reportée également sur l’image (a). Les lignes représentent l’ajustement des données par une loi en  $1/r$ , les pointillés représentent la moyenne de la vitesse mesurée à l’intérieur d’une branche. Barre 6 mm.

données, l’instabilité apparaît comme un phénomène perturbant l’écoulement de façon transitoire où, pendant un temps court, l’écoulement va devenir localement indépendant de la distance au point d’injection.

### Évolution du débit au cours du temps.

Pour une direction donnée, nous avons pu déterminer que l’évolution de la vitesse en fonction de la distance au point d’injection varie suivant une loi en  $1/r$  avant et après l’instabilité. Nous allons maintenant étudier l’évolution du débit en fonction du temps. Pour cela nous calculons le déplacement moyen,  $\langle V_{gel} \rangle$ , défini comme la moyenne angulaire de la composante radiale du champ de vitesse  $V_r$  à une distance donnée du trou d’injection :  $\langle V_{gel} \rangle (r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} V_r(r, \theta) d\theta$ . On peut relier cette vitesse au débit via la relation :

$$Q_v = \langle V_{gel} \rangle \times (2\pi r e) \quad (5.3)$$

où  $e$  l’épaisseur de la cellule. Dans le cas où l’écoulement est radial, nous pouvons modéliser l’évolution avec la distance au point d’injection par la relation :

$$\langle V_{gel} \rangle = A r^{-1} \quad (5.4)$$

Où  $A = \frac{Q_v}{2\pi e}$ . La figure 5.22 présente l’évolution, pour un débit de 20 mL/min, de  $\langle V_{gel} \rangle$  en fonction de la distance au point d’injection à différents instant : avant l’apparition de l’instabilité (figure 5.22(a)), pendant la propagation d’une branche (figure 5.22(b)) et après que les branches se soient développées dans toute la cellule (figure 5.22(c)).

Comme nous nous attendions au vu des observations, nous mesurons un écoulement radialement isotrope se caractérisant par une dépendance en  $1/r$  quand on se place respectivement avant et après la propagation des branches (figure 5.22(a) et 5.22(c)). Pendant la propagation des branches, bien

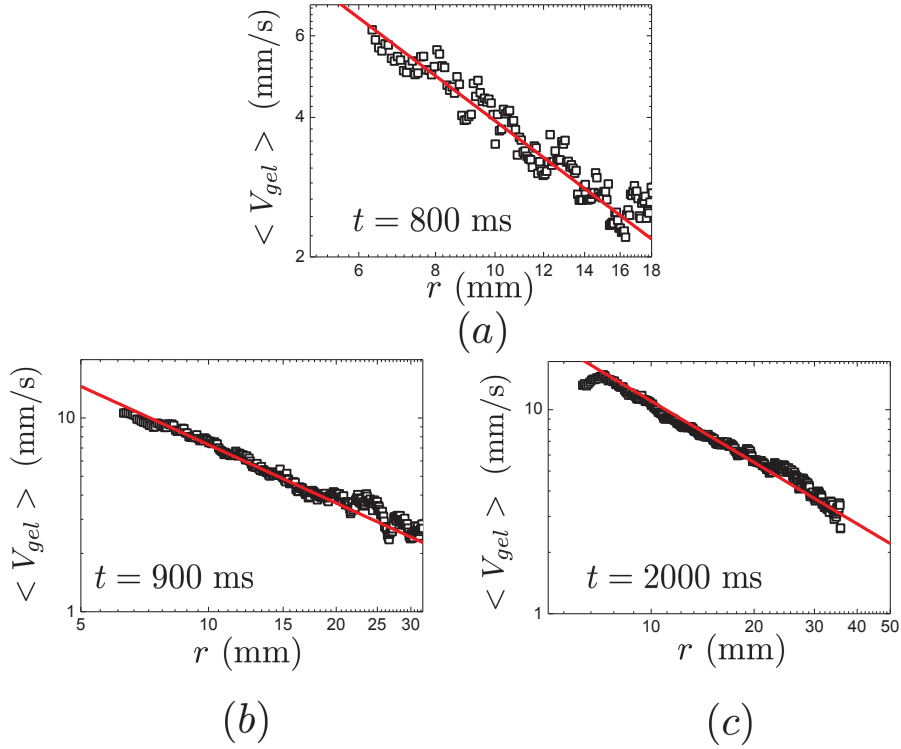


FIGURE 5.22 – Évolution de la moyenne angulaire de la vitesse  $\langle V_{gel} \rangle$  en fonction de la distance au point d'injection pour un débit d'injection de 20 mL/min. Chaque courbe correspond à un instant différent respectivement (a) avant l'apparition de l'instabilité, (b) pendant la propagation des canaux, (c) un fois que les canaux ont complètement traversés la tache de gel. Chaque ligne rouge correspond à un ajustement par la loi de puissance définie dans le texte 5.4.

que l'écoulement ne se plus isotrope angulairement (figure 5.19), la dépendance de la valeur moyenne du champ de vitesse en fonction de la distance se caractérise par une dépendance en  $1/r$ .

La relation 5.4 est ainsi valable à tout temps, y compris pendant la propagation des branches. Nous pouvons calculer le paramètre d'ajustement  $A$  de l'équation 5.4 pour toute la durée de l'expérience. On rappelle que ce paramètre est relié au débit d'injection  $Q_V$  par la relation :

$$A = \frac{Q_V}{2\pi e} \quad (5.5)$$

La relation 5.5 nous permet ainsi de connaître le débit instantané  $Q_v(t)$ . Nous pouvons ainsi suivre l'évolution instantanée du débit en fonction du temps. Les courbes 5.23(a) et 5.23(b) montrent l'évolution du débit calculé, à partir de l'expression 5.5, pour deux expériences où le débit de consigne est fixé respectivement à 20 mL/min (figure 5.23(a)) et 40 mL/min (figure 5.23(b)).

Nous remarquons que les branches apparaissent bien avant que le débit n'ait atteint sa valeur de consigne. L'apparition des branches va induire une augmentation très importante du débit provoquant l'apparition d'un "overshoot" dans l'évolution du débit d'injection, c'est-à-dire l'existence d'un intervalle de temps pendant lequel le débit mesuré est supérieur à sa valeur de consigne. Afin d'étudier cet "overshoot" nous avons réalisé une expérience similaire avec un fluide newtonien, mais ayant une viscosité au repos beaucoup plus faible que le gel étudié, à un débit de 20 mL/min.

La figure 5.24 montre l'évolution du débit au cours d'une expérience pendant laquelle nous avons injecté de l'huile de colza à débit constant. L'injection démarre à  $t = 0$  ms. Nous remarquons que, comme attendu, nous atteignons de manière très rapide (moins de 100 ms) un état stationnaire où

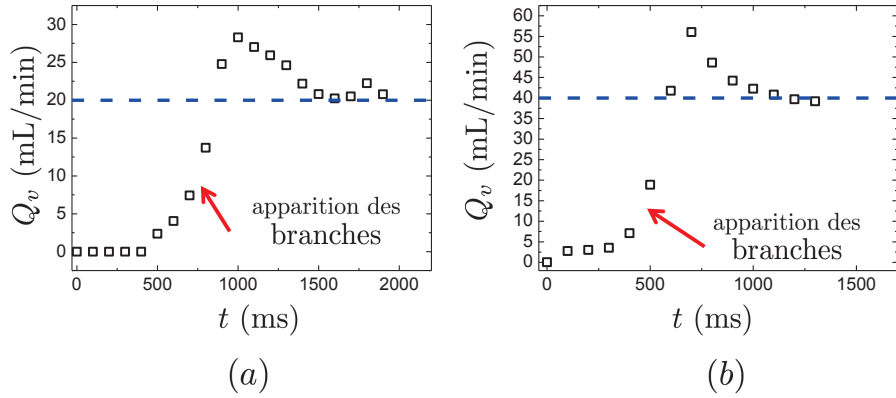


FIGURE 5.23 – Évolution du débit en fonction du temps, calculé à partir de la relation 5.5 pour deux expériences à des débits de consigne respectivement de (a) 20 mL/min et (b) 40 mL/min. Le début de la propagation des branches est signalé par une flèche rouge sur chaque courbe. Les pointillés bleus représentent le débit de consigne de chaque expérience.

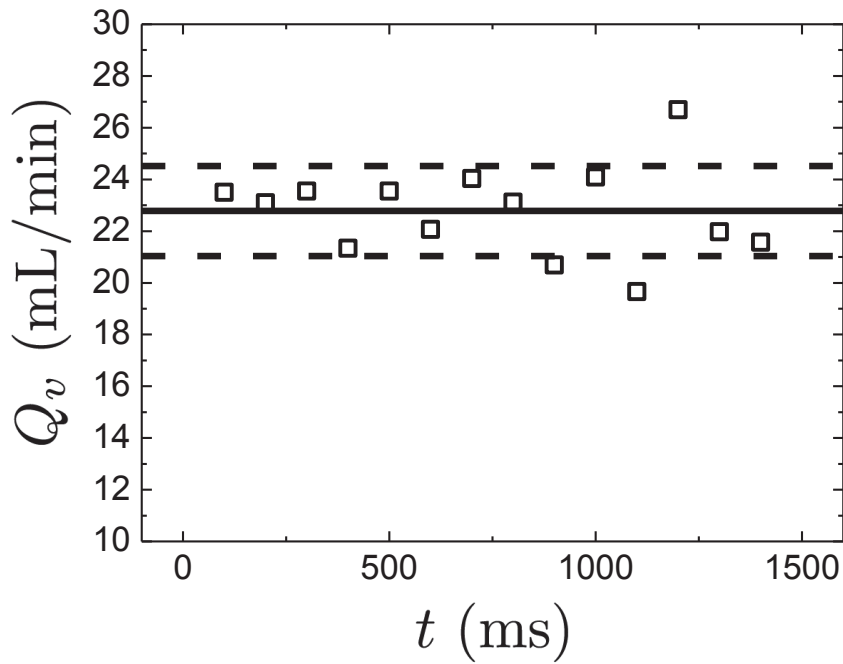


FIGURE 5.24 – Évolution du débit en fonction du temps dans le cas de l'injection d'huile de colza à un débit constant de 20 mL/min. Les traits noirs représentent la valeur moyenne du débit (trait plein) et la déviation standard (pointillés).

$Q_v = (22.78 \pm 1.74)$  mL/min, cohérent avec un débit imposé de 20 mL/min. Dans le cas de l'injection d'un fluide newtonien dans lui-même, nous n'observons ainsi aucun "overshoot" dans l'évolution du débit en fonction du temps. Au chapitre 2, nous avons réalisé, à débits faibles, des courbes similaires qui ne présentait aucun "overshoot". Cet "overshoot" du débit semble donc lié au caractère fortement rhéofluidifiant du gel et n'apparaissent que si le débit d'injection est suffisamment fort.

Ces "overshoot" apparaissent dans le régime où des branches sont en train de se propager dans la cellule. Au paragraphe 5.2.1, nous avons émis l'hypothèse que les branches se propageaient à la surface de la cellule. Bien que la vitesse mesurée par PIV soit moyennée sur l'épaisseur de la cellule, nous nous attendons à ce que les déplacements du fluide soient concentrés dans ces branches. Ainsi, l'épaisseur à prendre en compte dans la relation 5.5 ne serait pas l'épaisseur de la cellule mais l'épaisseur de la branche et les débits réels seraient ainsi bien inférieurs à ceux de la figure 5.23. L'overshoot pourrait donc être une évidence indirecte que les branches n'occupent pas toute l'épaisseur de la cellule. Néanmoins, la mesure de l'épaisseur de branches ne peut pas être réalisée via ce montage et nous ne pouvons donc pas vérifier cette hypothèse.

### 5.2.3 Confrontation entre déplacements et signal de biréfringence.

Au paragraphe 5.2.1, nous avons mesuré la vitesse de propagation du signal de biréfringence associée à l'instabilité. Dans le paragraphe 5.2.2, à l'aide des mesures de PIV, nous avons pu montrer que la vitesse est constante à l'intérieur d'une branche de l'instabilité. Pour un débit de 10 mL/min, la vitesse à l'intérieur d'une branche est de  $V_r^b = (8.43 \pm 0.83)$  mm/s. Nous allons comparer cette vitesse à la vitesse de propagation de l'instabilité mesurée en biréfringence. La figure 5.25 compare ces deux grandeurs. Nous remarquons ainsi que  $V_r^b$  est toujours inférieure à  $V_{tip}$  (le rapport  $V_{tip}/V_r^b$  est toujours plus grand que 1) indiquant que le gel se déplace moins vite que ne se propage le signal de biréfringence. Malgré tout, comme signalé précédemment, l'interface gel/air se déforme dès que les branches l'atteignent. On a donc certainement un couplage entre une onde de réorientation, provoquant la propagation rapide d'un signal de biréfringence, et l'écoulement du fluide.

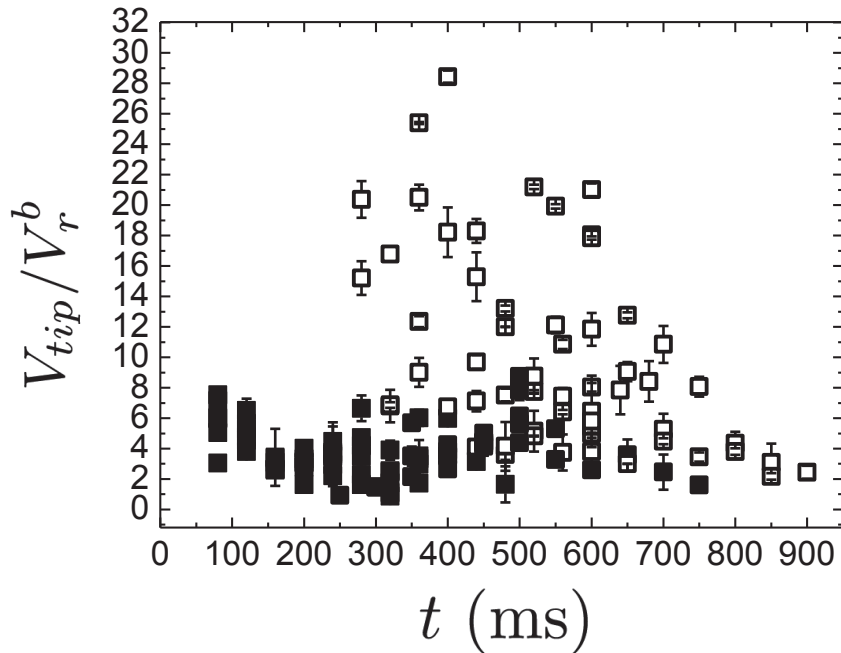


FIGURE 5.25 – Rapport entre la vitesse de propagation des branches  $V_{tip}$  et la vitesse mesurée à l'intérieur d'une branches  $V_r^b$  au cours d'une expérience réalisée à un débit de  $Q_v = 10$  mL/min.

Une autre hypothèse a été énoncée au paragraphe 5.2.2. Si l'on considère les branches comme résultant d'un glissement en bloc à l'interface gel/verre, alors la vitesse mesurée en PIV pourrait correspondre à la vitesse du fluide "en volume" entraîné par le bloc de gel en train de glisser sur les

parois de la cellule. Ces conditions pourraient justifier une si grande différence de vitesse entre PIV et biréfringence. La question se poserait alors de savoir pourquoi le signal de biréfringence associé à ce glissement est si intense.

Il convient de noter qu'il existe une différence fondamentale entre les deux vitesses.  $V_{tip}$  correspond à la vitesse de propagation d'une structure (vraisemblablement aux interfaces gel/air) associé à l'orientation des micelles, alors que  $V_r$  est la vitesse, moyennée sur l'épaisseur de la cellule, d'écoulement du gel.

Au final, la nature de ces branches n'est pas claire à ce stade. Néanmoins quelques points ont été notés :

- Les vitesses d'avancée des pointes de branches sont incompatibles avec un écoulement (certaines vitesses sont voisines de la vitesse de Rayleigh, voir paragraphe 5.2.1).
- Lorsque l'on injecte du gel avec particules, nous observons des branches se former sans particules à l'intérieur de celles ci.
- L'interface gel/air est déformée dès l'instant où les branches touchent l'interface.
- Il existe une grande différence entre la vitesse de propagation du signal de biréfringence et la vitesse d'écoulement que l'on a mesurée par PIV

Pour conclure, nous ne pouvons pas définir les branches comme de simples canaux dans lesquels s'écoulerait, jusqu'à l'interface gel/air, le fluide injecté.

### 5.3 Interprétations des observations expérimentales

Comme mentionné au paragraphe 5.1.2, l'instabilité se déclenche pour un débit critique que l'on peut relier à un cisaillement caractéristique. Les micelles géantes, au-delà d'un taux de cisaillement caractéristique, vont exhiber un plateau de contrainte dans leur courbe d'écoulement. Ce plateau est associé à l'existence de bandes de cisaillement (l'écoulement devient hétérogène). En effet, les bandes de cisaillement correspondent à l'existence de domaines de gel de structure différente (cela a été décrit au chapitre 1). A ces domaines différents vont correspondre différentes viscosités de cisaillement. Les branches se propageant à de grandes vitesses, on peut supposer qu'elles sont associées à une viscosité plus faible que celle du gel environnant. De plus, le signal de biréfringence associé à ces branches est clairement différent du signal de biréfringence attendu dans le cas d'un écoulement radial. Nous avons supposé que ces branches se propagent proches des surfaces de verre, là où le cisaillement est le plus grand.

De nombreux auteurs (voir l'article de revue [2]) ont étudié l'apparition des bandes de cisaillement en rhéologie en mesurant le signal de biréfringence sous écoulement en géométrie de couette. Au delà d'un taux de cisaillement critique, ils ont observé l'apparition d'une zone fine proche du cylindre rotatif, possédant un signal de biréfringence élevée. Au fur et à mesure de l'augmentation du taux de cisaillement, cette zone va croître jusqu'à occuper tout l'entrefer du rhéomètre. La figure 5.26 d'après [43], montre la progression de la bande de cisaillement dans l'entrefer du rhéomètre. Dans l'instabilité que nous avons observée dans notre géométrie, nous avons pu mettre en évidence que les branches, après s'être propagées, vont se développer jusqu'à couvrir tout le volume d'échantillon permettant à l'écoulement de redevenir radial.

Au paragraphe 5.1.1, nous avons décrit des motifs particuliers de biréfringence autour du trou d'injection (là où le taux de cisaillement est maximum). Ces motifs de biréfringence apparaissent aux temps longs et leur complexité dépend du débit appliqué. Ces motifs rappellent les motifs de biréfringence observés, au temps longs, dans une cellule de Couette soumise à un taux de cisaillement

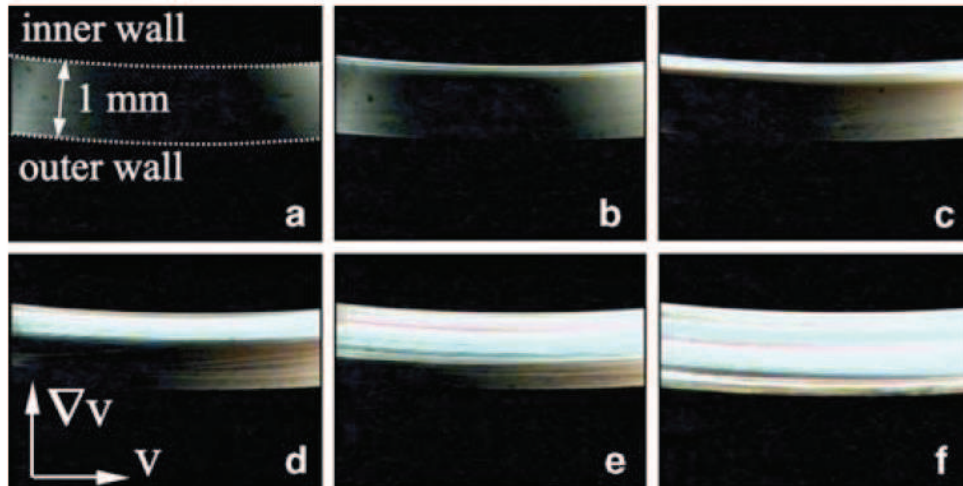


FIGURE 5.26 – Succession d’images à différents taux de cisaillement prises dans l’entrefer d’une cellule de Couette pour une solution de micelles de  $C_pCl$ /Hexanol. L’échantillon est observé à travers polariseur et analyseur croisés. On observe la nucléation (b) puis la croissance d’une bande possédant une signal de biréfringence très intense. Cette bande va éventuellement couvrir tout l’entrefer du rhéomètre (f). D’après [43]

(figure 5.27 d’après [59]).

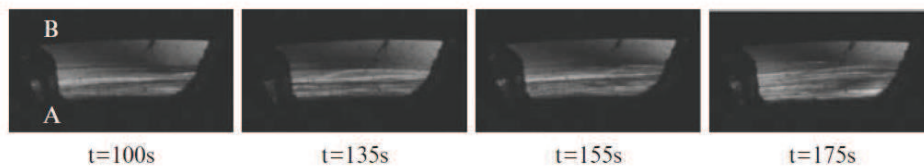


FIGURE 5.27 – Écoulement en bandes de cisaillement d’une solution de CTAB dans une cellule de Couette. Les parois de la cellule sont représentées par les symboles A et B. La bande induite par le cisaillement se trouve au niveau de la paroi en rotation A. On remarque que la structure de cette bande est constituée d’une succession de bandes d’intensité différente. D’après [59].

Des fluctuations de la contrainte de cisaillement ont de plus été observées lors de l’étude de la réponse transitoire de solution de micelles géantes à l’application d’un taux de cisaillement [56] [57] [58]. Ces phénomènes de fluctuations et d’apparition de bandes secondaires aux temps longs ne peuvent être issus d’instabilité hydrodynamique en raison du faible nombre de Reynolds (dû à la viscosité très élevée des solutions). Comme décrit au chapitre 1, on peut associer l’apparition d’instabilités élastiques au nombre de Weissenberg  $Wi$ . Le comportement sous écoulement de solutions de micelles géantes a été étudié en fonction de ce nombre de Weissenberg. Pour des taux de cisaillement élevés (c’est-à-dire aux grands nombres de Weissenberg), il a été montré l’apparition d’un effet rhéo-épaississant. La figure 5.28, d’après [64], montre l’observation de l’entrefer d’une cellule de Couette pour différents taux de cisaillements. On observe l’apparition d’une structure sous écoulement de plus en plus complexe lorsque l’on augmente le taux de cisaillement.

Bien que la géométrie utilisée soit très différente d’une géométrie de cisaillement usuelle, une certaine similarité semble exister entre l’instabilité observée dans nos expériences et l’instabilité formant des bandes de cisaillement. L’écoulement aux temps longs en particulier pourrait être relié à



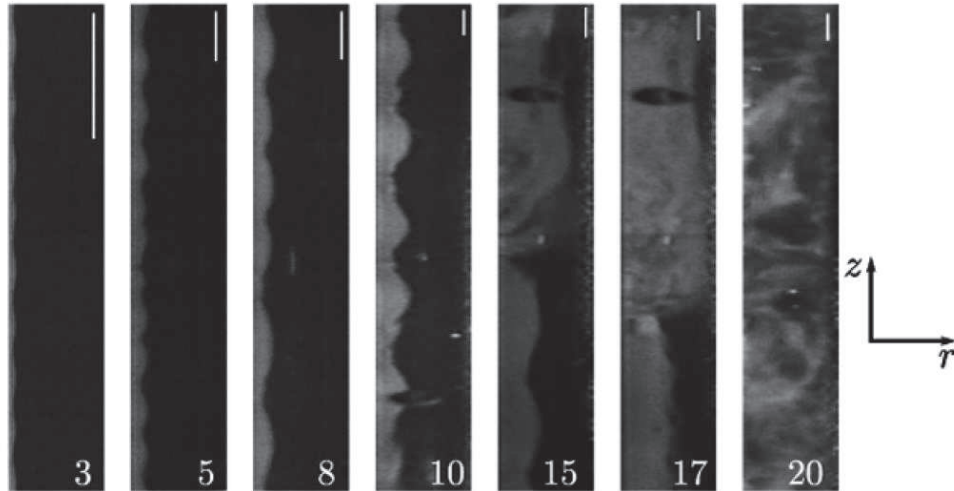


FIGURE 5.28 – Observation de l’entrefer d’une cellule pour différents taux de cisaillement compris entre  $3 \text{ s}^{-1}$  et  $20 \text{ s}^{-1}$  pour une solution de CpCl/NaSal. On remarque le changement de motifs qui devient de plus en plus irrégulier au fur et à mesure que l’on augmente le taux de cisaillement. Barre 1.13 mm. D’après [64]

l’apparition de turbulence élastique.

## Conclusion

Nous avons observé l’existence d’une instabilité originale dans l’écoulement de micelles géantes en géométrie radiale. Cette instabilité provoque une perte, transitoire, de la symétrie radiale de l’écoulement. Cette instabilité provoque l’apparition de branches d’écoulement fines se propageant vraisemblablement proche des surfaces de verre (là où le cisaillement est le plus important). Ces branches possèdent une signature du signal de biréfringence particulière. Cette instabilité reste non expliquée, néanmoins, il y a un parallèle intéressant avec le comportement des micelles géantes sous cisaillement et l’existence de bandes de cisaillement au-delà d’un taux de cisaillement critique, et à plus haut taux de cisaillement à l’existence de turbulence élastique. Ce parallèle mériterait d’être approfondi. Il serait intéressant de pouvoir poursuivre l’étude de cette instabilité dans d’autres conditions (changement de type de géométrie, variation de l’épaisseur de la cellule, expérience à pression imposée,...), et de caractériser de façon quantitative le lien entre le seuil de déclenchement de l’instabilité et les paramètres physico-chimiques du gel.

# Conclusion

En combinant des techniques de visualisation directe à l'aide d'une caméra rapide, des techniques de vélocimétrie par corrélations d'images(PIV) et des mesures de biréfringence sous écoulement, nous avons obtenu un certain nombre de résultats quantitatifs en cellule de Hele-Shaw radiale sur la phénoménologie et les mécanismes de fracturation de fluides viscoélastiques modèles de différentes structures. Deux grands axes ont été explorés : (i) la transition digitation/fracture et (ii) la propagation d'une fracture.

En couplant observation directe et PIV, nous avons déterminé un critère simple mais quantitatif pour distinguer une digitation visqueuse d'une fracturation. En comparant la vitesse du gel au voisinage de la pointe du motif de l'instabilité à l'interface gel/huile, à la vitesse de la pointe de ce même motif, nous avons montré l'existence d'une discontinuité entre ces deux vitesses dans la direction de propagation de la fracture dans le cas des fractures alors que l'on mesure une continuité des vitesses à l'interface pour la digitation. Une explication simple pour comprendre cette différence de comportement consiste à dire qu'un doigt de Saffman-Taylor "pousse" le gel tandis qu'une fracture va le déchirer.

Lors d'une expérience où l'on fait pousser un motif de fracture sur un motif de digitation par saut du débit d'injection d'huile dans la cellule, nous avons déterminé une vitesse critique de transition doigt/fracture. Cette vitesse est une caractéristique du gel considéré. On peut la corrélérer aux propriétés viscoélastiques du gel. Dans le cas de microémulsions connectées, nous avons ainsi montré que les fractures apparaissent dès que le taux d'élongation  $\dot{\epsilon}$  est supérieur à l'inverse du temps de relaxation du système, en accord avec le caractère « fragile » du matériau. Dans le cas de micelles pontées, nous avons établi l'existence de différents régimes de fractures : pour des micelles sphériques ou de faible excentricité, le comportement est identique à celui des microémulsion connectées et la fracture est fragile. A contrario lorsque les micelles s'allongent (forte anisotropie des nœuds), le taux d'élongation va devenir supérieur à l'inverse des temps de relaxations indiquant que le gel ne se comporte plus de manière fragile, mais ductile . La transition entre les deux régimes qui a été déterminée est en cohérence avec les résultats précédents cette thèse.

Nous avons étudié comment varie le rayon de courbure de la pointe de fracture avec la vitesse de propagation de cette fracture et nous avons aussi mesuré les champs de déplacement autour d'une pointe de fracture de microémulsion . Nous avons observé l'existence d'une gamme de vitesses de propagation pour laquelle la vitesse du gel autour de la pointe est inférieure à la vitesse critique de nucléation d'une fracture. Or, dans la même gamme de vitesse, nous mesurons une diminution du rayon de courbure de la pointe avec cette vitesse. Ce comportement inattendu n'a pour l'instant pas pu être expliqué .

Pour des fracture dont la vitesse d'avancée suffisamment grande, le gel autour de la pointe de fracture en train de s'ouvrir n'a pas la possibilité de s'écouler, il a un comportement de solide élastique, ce qui nous autorise, dans ce régime, à calculer l'énergie de fracture à partir de la mesure du rayon de courbure de la pointe parabolique dans le cadre de la théorie de la fracture linéaire d'Irwin . On observe alors que l'extrapolation à vitesse nulle de l'énergie de fracture correspond bien au travail de Dupré, c'est à dire deux fois la tension interfaciale entre l'huile et gel. Nous avons également développé un modèle simple de mécanisme de propagation de la fracture dans ce gel modèle qui prédit la taille de la zone de process en pointe de fracture connaissant la vitesse de propagation mesurée. Cette zone, pour les microémulsions à une taille de l'ordre d'une dizaine de micromètres.

Nous avons montré que les champs de déplacements du gel mesurés par PIV autour d'une pointe de fracture ne varient pas avec la vitesse de la fracture. Nous avons ainsi montré que les champs de déplacement varient avec la distance en  $1/\sqrt{r}$ , où  $r$  est la distance à la pointe de fracture, comme attendu pour un solide fragile. Néanmoins la variation angulaire des champs de déplacement n'est pas celle attendue par la théorie linéaire élastique. Des mécanismes de déformation plus complexes qu'une simple déformation élastique doivent donc à l'origine les champs observés.

En utilisant des micelles pontées en régime enchevêtré, nous avons mesuré la biréfringence en pointe de fracture qui traduit les réorientations des micelles au voisinage de la pointe de fracture. La biréfringence à la pointe de fracture consiste en deux lobes orientés normalement à la direction de propagation de celle-ci. En analysant ce signal nous avons pu accéder à la taille de la zone de réorganisation du matériau au voisinage de la pointe de fracture. Cette zone, millimétrique pour les micelles pontées en régime enchevêtré, diminue à mesure que la vitesse de propagation de la fracture augmente, traduisant une diminution du caractère ductile de la fracture avec cette vitesse. Ces mesures constituent une première quantification macroscopique de la ductilité d'un fluide complexe.

En marge des expériences de fracture, nous avons découvert une instabilité d'écoulement originale dans les micelles géantes. Cette instabilité apparaît lorsqu'on injecte au-delà d'un débit seuil, dans un échantillon de gel initialement confiné au repos dans une cellule d'Hele-Shaw, le même gel. Elle se traduit par l'apparition de branches qui poussent à partir du point d'injection et qui exhibent un signal de biréfringence qui se propage à grande vitesse dans la cellule. En mesurant les champs de vitesses par PIV, nous avons montré que la vitesse du gel à l'intérieur des branches était constante et supérieure à la vitesse de l'écoulement moyen radial sous jacent attendu en l'absence d'instabilité. Le phénomène de naissance et croissance de branches est transitoire : une fois que les branches ont atteint l'interface gel/air elle s'élargissent et l'écoulement récupère une symétrie radiale. L'origine de l'instabilité reste pour le moment inconnue, néanmoins il est possible qu'elle soit liée à un écoulement en bande de cisaillement.

En résumé, nous avons, pour plusieurs types de réseaux transitoires, pu décrire de manière quantitative l'apparition et la propagation de fractures dans une cellule de Hele-Shaw radiale. Dans le cas d'un gel "fragile" nous avons déterminé une forme analytique de la variation du champ de déplacement avec la distance à la pointe de la fracture ; il serait intéressant de pouvoir réaliser une analyse similaire, pour des micelles pontées en régime enchevêtré afin d'étudier comment le caractère plus ou moins ductile d'un fluide complexe modifie les champs de déplacements mesurés. Les premières mesures de la taille de la zone de processus pour un fluide complexe en pointe de fracture sont prometteuses. Il faudra étudier systématiquement comment cette taille est couplée avec la microstructure du gel et l'intensité de la sollicitation. Enfin, l'instabilité d'écoulement dans les micelles géantes que nous avons observée n'a pour l'instant jamais été décrite, nous espérons qu'elle suscitera l'intérêt de rhéophysiciens théoriciens pour élucider son origine physique.

# Bibliographie

- [1] C. Ligoure and S. Mora. Fracture in complex fluids : the case of transient networks. *Rheol. Acta*, 52 :91–114, 2013.
- [2] S. Lerouge and J-F. Berret. Shear-induced transitions and instabilities in surfactant wormlike micelles. *Adv Polym Sci*, 230 :1–71, 2010.
- [3] J. F. Hutton. Fractures of liquids in shear. *Nature*, 200 :646, 1963.
- [4] M. J. Buehler. Colloquium : Failure of molecules, bones and the earth itself. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :1459, 2010.
- [5] J. Eggers and E. Villermaux. Physics of liquid jets. *Rep. Prog. Phys.*, 71 :036601, 2008.
- [6] H. Tabuteau, S. Mora, L. Ramos, G. Porte, and C. Ligoure. Ductility versus brittleness in self-assembled transient networks. *Prog. Theoretical Phys. Supplement*, 175 :47, 2008.
- [7] P. Skrzyszewska, J. Sprakel, FA de Wolf, R. Fokkink, MA Cohen Stuart, and J. van der Gucht. Fracture and self-healing in a well-defined self-assembled polymer network. *Macromolecules*, 43 :3542, 2010.
- [8] J-F Berret and Y. Serero. Evidence of shear-induced fluid fracture in telechelic polymer networks. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :048303, 2001.
- [9] L. Ramos and C. Ligoure. Structure of a new type of transient network : entangled wormlike micelles bridged by telechelic polymers. *Macromolecules*, 40 :1248, 2007.
- [10] K. Nakaya-Yaegashi, L. Ramos, H. Tabuteau, and C. Ligoure. Linear viscoelasticity of entangled wormlike micelles bridged by telechelic polymers : An experimental model for a double transient network. *J. Rheology*, 52 :359, 2008.
- [11] H. Tabuteau, S. Mora, G. Porte, M. Abkarian, and C. Ligoure. Microscopic mechanisms of the brittleness of viscoelastic fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :155501, 2009.
- [12] T. Tixier, H. Tabuteau, A. Carrière, L. Ramos, and C. Ligoure. Transition from "brittle" to "ductile" rheological behavior by tuning the morphology of self-assembled networks. *Soft Matter*, 6 :2699, 2010.
- [13] L. Ramos, A. Laperrousaz, P. Dieudonné, and C. Ligoure. Structural signature of a brittle-to-ductile transition in self-assembled networks. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :148302, 2011.
- [14] H. Tabuteau, S. Mora, M. Ciccotti, C-Y. Hui, and C. Ligoure. Propagation of a brittle fracture in a viscoelastic fluid. *SoftMatter.*, 7 :9474, 2011.
- [15] F. Molino, J. Appell, M. Filalli, E. Michel, G. Porte, S. Mora, and S. Sunyer. A transient network of telechelic polymers and microspheres : structure and rheology. *J. Phys. Cond. Matt.*, 12 :A491, 2000.
- [16] S. P. Meeker, R. T. Bonnecaze, and M. Cloitre. Slip and flow in soft particle pastes. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :198302, 2004.
- [17] J. Sprakel, E. Spruijt, M.A. Cohen-Stuart, M.A.J. Michels, and J. van der Gucht. Intermittent dynamics in transient polymer networks under shear : signs of self-organized criticality. *Phys. Rev. E*, 79 :056306, 2009.
- [18] S. M. Fielding. Complex dynamics of shear banded flows. *SoftMatter*, 3 :1262, 2007.
- [19] P. Olmsted. Perspectives on shear banding in complex fluids. *Rheol. Acta*, 47 :283, 2008.

- [20] P. E. Boukany and S-Q. Wang. Use of particle-tracking velocimetry and flow birefringence to study nonlinear flow behavior of entangled wormlike micellar solution : From wall slip, bulk disentanglement to chain scission. *Macromolecules*, 41 :1455, 2007.
- [21] H. J.S. Feder and J. Feder. Self-organized criticality in a stick-slip process. *Phys. Rev. Lett.*, 66 :2669, 1991.
- [22] J. Sprakel, E. Spruijt, J. van der Gucht, J. T. Padding, and W. J. Briels. Failure-mode transition in transient polymer networks with particle-based simulations. *Soft Matter*, 5 :4748, 2009.
- [23] N. A. Spenley, M. E. Cates, and T. C. B McLeish. Non linear rheology of wormlike micelles. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :939, 1993.
- [24] S. N. Zhurkov. Kinetic concept of strength of solids. *Int. J. Fract. Mech.*, 1 :311, 1965.
- [25] S. Santucci, L. Vanel, and S. Ciliberto. Slow crack growth : Models and experiments. *Eur. Phys. J. Special Topics*, 146 :341, 2007.
- [26] J. Sprakel, S. Lindström, T. E. Kodger, and D. A. Weitz. Stress enhancement in the delayed yielding of colloidal gels. *Phys. Rev. Lett.*, 106 :248303, 2011.
- [27] T. Divoux, D. Tamarit, C. Barentin, and S. Manneville. Transient shear banding in a simple yield stress fluid. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :208301, 2010.
- [28] U. Olsson, J. Börjesson, R. Angelico, A. Ceglie, and G. Palazzo. Slow dynamics of wormlike micelles. *Soft Matter*, 6 :1769–1777, 2010.
- [29] D. Bonn, H. Kellay, K. Ben-Djemaa, and J. Meunier. Delayed fracture of an inhomogeneous soft solid. *Science*, 280 :265, 1998.
- [30] A. Tripathi, K. C. Tam, and G. H. McInley. Rheology and dynamics of associative polymers in shear and extension : theory and experiments. *Macromolecules*, 39 :1981, 2006.
- [31] Y. M. Joshi and M. M. Denn. Rupture of entangled polymeric liquids in elongational flow with dissipation. *J. Rheol.*, 48 :591, 2004.
- [32] J. P. Rothstein. Transient extensional rheology of wormlike micelle solutions. *J. Rheol.*, 47 :1127, 2003.
- [33] A. Bhardwaj, E. Miller, and J. P. Rothstein. Filament stretching and capillary breakup extensional rheometry measurements of viscoelastic wormlike micelle solutions. *J. Rheology*, 51 :693, 2007.
- [34] A. Considère. Mémoire sur l’emploi du fer et de l’acier dans les constructions. *Annales des Ponts et Chaussées*, 9 :574, 1885.
- [35] C. S. J. Petrie. Considère reconsidered : Necking of polymeric liquids. *Chemical Engineering Science*, 64 :4693, 2009.
- [36] J. Sprakel, N. A. M. Besseling, F. A. M. Leermakers, and M. A. Cohen-Stuart. Equilibrium capillary forces with atomic force microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :104504, 2007.
- [37] G. R. Irwin. Analysis of stresses and strains near the end of a crack traversing a plate. *Journal of Applied Mechanics*, 24 :361–364, 1957.
- [38] C. Y. Hui, A. Jagota, S. J. Bennison, and J. D. Londono. Crack blunting and the strength of soft elastic solids. *Proc. Royal Soc. Lond. A*, 459 :1489–1516, 2003.
- [39] J. Rice. A path independent integral and the approximate analysis of strain concentration by notches and cracks. *J. Appl. Mech.*, 35 :379–386, 1968.
- [40] M. Rubinstein and R.H. Colby. *Polymer Physics*. 2003.
- [41] M-A Fardin and S. Lerouge. Instabilities in wormlike micelle systems : From shear-banding to elastic turbulence. *Eur. Phys. J. E*, 35 :91, 2012.
- [42] H. Rehage and H. Hoffmann. Viscoelastic surfactant solutions : model systems for rheological research. *Molecular Physics*, 74(5) :933–973, 1991.
- [43] J-F. Berret. *Rheology of wormlike micelles : equilibrium properties and shear banding transition*, chapter 19, pages 235–275. Elsevier, Dordrecht, 2005.

- [44] J.B. Salmon, S. Manneville, and A. Colin. Shear banding in a lyotropic lamellar phase i. time-averaged velocity profiles. *Phys. Rev. E*, 68(5) :051503, 2003.
- [45] J.B. Salmon, S. Manneville, and A. Colin. Shear banding in a lyotropic lamellar phase ii. temporal fluctuations. *Phys. Rev. E*, 68(5) :051504, 2003.
- [46] S. Manneville, A. Colin, G. Waton, and F. Schosseler. Wall slip, shear banding, and instability in the flow of a triblock copolymer micellar solution. *Phys. Rev. E*, 75(6) :061502, 2007.
- [47] M.P. Lettinga and J.K.G. Dhont. Non-equilibrium phase behaviour of rodlike viruse under shear flow. *J. Phys. Cond. Matt.*, 16(38) :3929–3939, 2004.
- [48] C. Pujolle-Robic and L. Noirez. Observation of shear induced nematic-to-isotropic transition in side-chain liquid crystal polymers. *Nature*, 409(6817) :167–171, 2001.
- [49] G. Debregas, H. Tabuteau, and J.M di Meglio. Deformation and flow of a two dimensional foam under continous shear. *Phys. Rev. Lett.*, 87(17) :178305, 2001.
- [50] J. Lauridsen, G. Chanan, and M. Dennin. Velocity profiles in slowly sheared bubble rafts. *Phys. Rev. Lett.*, 93(1) :018303, 2004.
- [51] C. Gilbreth, S. Sullivan, and M. Dennin. Flow transition in two-dimensional foams. *Phys. Rev. E*, 74(5) :051406, 2006.
- [52] P. Coussot, J.S. Raynaud, F. Bertrand, P. Moucheront, J.P. Guilbaud, H.T. Huynh, S. Jarny, and D. Lesueur. Coexistence of liquid and solid phases in flowing soft glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 88(21) :218301, 2002.
- [53] W. Losert, L. Bocquet, T.C. Lubensky, and J.P. Gollub. Particle dynamics in sheared granular matter. *Phys. Rev. Lett.*, 85(7) :1428–1431, 2000.
- [54] D.M. Mueth, G.F Debregas, G.S Karczmar, P.J. Eng, S.R. Nagel, and H.M. Jaeger. Signatures of granular microstructure in dense shear flows. *Nature*, 406(6794) :385–389, 2000.
- [55] M.E. Cates, T.C.B McLeish, and G. Marruci. The rheology of entangled polymers at very high shear rates. *Europhys. Lett.*, 21(4) :451–456, 1993.
- [56] W.M. Holmes, M.R Lopez-Gonzales, and P.T. Callaghan. *Europhys. Lett.*, 64 :274, 2003.
- [57] M.R. Lopez-Gonzales, W.M. Holmes, P.T. Callaghan, and P.J. Photinos. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :268302, 2004.
- [58] M.R. Lopez-Gonzales, W.M. Holmes, and P.T. Callaghan. *Soft Matter*, 2 :855, 2006.
- [59] S. Lerouge, J.P Decruppe, and J.F. Berret. Correlations between rheological and optical properties of a micellar solution under shear banding flow. *Langmuir*, 16(16) :6464–6474, 2000.
- [60] J.P. Decruppe, S. Lerouge, and J.F. Berret. *Phys. Rev. E*, 63 :022501, 2001.
- [61] S. Lerouge, M.A. Fardin, M. Argentina, G. Grégoire, and O. Cardoso. *Soft Matter*, 4 :1808, 2008.
- [62] M.A. Fardin, T.J. Ober, V. Grenard, T. Divoux, S. Manneville, G.H. McKinley, and S. Lerouge. Interplay between elastic instabilities and shear banding : three categories of taylor-couette flows and beyond. *Soft Matter*, 8 :10072, 2009.
- [63] S. Lerouge, M. Argentina, and J.P. Decruppe. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :088301, 2006.
- [64] M.A Fardin, T. Divoux, M.A. Guedeau-Boudeville, I. Buchet-Maulien, J. Browaeys, G.H. McKinley, S. Manneville, and S. Lerouge. *Soft Matter*, 8 :2535, 2012.
- [65] M.A. Fardin, D. Lopez, J. Croso, G. Grégoire, O. Cardoso, G.H. McKinley, and S. Lerouge. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :178303, 2010.
- [66] Y. Wang and S.Q. Wang. Rupture in rapid uniaxial extension of linear entangled melts. *Rheol. Acta*, 49 :1179, 2010.
- [67] P.E. Boukany, S.Q. Wang, and X. Wang. Step shear of entangled linear polymer melts : new experimental evidence for elastic yielding. *Macromolecules*, 42 :6261, 2009.

- [68] P. G. Saffman and G.I. Taylor. The penetration of a fluid into porous medium or hele-shaw cell containing a more viscous fluid. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 245 :312–329, 1958.
- [69] D. Bensimon, L. P. Kadanoff, S. Liang, B. I. Shraiman, and C. Tang. Viscous flows in two dimensions. *Rev. Modern. Phys.*, 58 :958, 1986.
- [70] A. Lindner. *L'instabilité de Saffman Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation de motifs*. PhD thesis, Université Paris 6, 2000.
- [71] A. Lindner, D. Bonn, and J. Meunier. Viscous fingering in a shear thinning fluid. *Physics of fluids*, 12 :256, 2000.
- [72] A. Lindner, P. Coussot, and D. Bonn. Viscous fingering in a yield stress fluid. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :314, 2000.
- [73] A. Lindner, D. Bonn, E. Corvera Poiré, M. Ben Amar, and J. Meunier. Viscous fingering in non-newtonian fluids. *J. Fluid Mech.*, 469 :237, 2002.
- [74] S. Mora and M. Manna. Saffman-taylor instability for generalized newtonian fluids. *Phys. Rev. E*, 80 :016308, 2009.
- [75] S. Mora and M. Manna. Saffman-taylor instability of viscoelastic fluids : From viscous fingering to elastic fractures. *Phys. Rev. E*, 81 :026305, 2010.
- [76] S. Mora and M. Manna. From viscous fingering to elastic instabilities. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 173-174 :30–39, 2012.
- [77] H. Zhao and J. V. Maher. Associating-polymer effects in hele-shaw experiments. *Phys. Rev. E*, 47 :4278, 1993.
- [78] J. Ignés-Mullol, H. Zhao, and J. V. Maher. Velocity fluctuations of fracture like disruptions of associating polymer solutions. *Phys. Rev. E*, 51 :1338, 1995.
- [79] D. Vlad, J. Ignés-Mullol, and J. V. Maher. Velocity-jump instabilities in hele-shaw flow of associating polymer solutions. *Phys. Rev. E*, 60 :4423, 1999.
- [80] E. Lemaire, P. Levitz, G. Daccord, and H. van Damme. From viscous fingering to viscoelastic fracturing in colloidal fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :2009, 1991.
- [81] O. Greffier, A. Al kahwaji, J. Rouch, and H. Kellay. Observation of a finite-time singularity in needle propagation in hele-shaw cells. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :3860, 1998.
- [82] J. Feder. *Fractals*. Plenum, New York, 1988.
- [83] M. Filali, M.J Ouazzani, E. Michel, R. Aznard, G. Porte, and J. Appell. Robust phase behavior of model transient networks. *J. Phys. Chem. B*, 105 :10528, 2001.
- [84] E. Michel. *Propriétés dynamiques des réseaux transitoires : diffusion de lumière et rhéologie*. PhD thesis, Université Montpellier II, 2001.
- [85] M. Filali, R. Aznar, M. Svenson, G. Porte, and J. Appell. Swollen micelles plus hydrophobically modified hydrosoluble polymers in aqueous solutions : decoration versus bridging. a small angle neutron scattering study. *The Journal of Physical Chemistry B*, 103(34) :7293–7301, 1999.
- [86] M.S. Green and A.V. Tobolsky. A new approach to the theory of relaxing polymer media. *J. Chem. Phys.*, 14 :80, 1946.
- [87] H. Rehage and H. Hoffmann. Rheological properties of viscoelastic surfactant systems. *The Journal of Physical Chemistry*, 92(16) :4712–4719, 1988.
- [88] G. Brandilla. *Dynamique lente de systèmes colloïdaux modèles*. PhD thesis, Université Montpellier II, 2010.
- [89] P.-G. de Gennes. *Langmuir*, 12 :4497, 1996.
- [90] F. Saulnier, T. Ondarçuhu, A. Aradian, and Raphaël E. Adhesion between a viscoelastic material and a solid surface. *Macromolecules*, 37 :1067–1075, 2004.
- [91] D. Martina. *Dynamique de fracture d'un hydrogel thermoréversible de biopolymères*. PhD thesis, Université Paris VI - Pierre et Marie Curie, 2008.

- [92] T. Baumberger, C Caroli, and D Martina. Solvent control of crack dynamics in a reversible hydrogel. *Nat. Mat.*, 5 :552, 2006.
- [93] T. Baumberger, C Caroli, and D Martina. Fracture of a biopolymer gel as a viscoplastic disentanglement process. *Eur. Phys. J. E*, 21 :81, 2006.
- [94] J. Israelachvili. *Intermolecular and Surface forces*. Academic Press, 1991.
- [95] C. Ligoure V. Testard, J. Oberdisse. Monte carlo simulation of colloidal pair potential induced by telechelic polymers : statistics of loops and bridges. *macromolecules*, 41 :7219–7226, 2008.
- [96] L. Ramos, A. Laperrousaz, P. Dieudonné, and C. Ligoure. Structural signature of a brittle-to-ductile transition in self-assembled networks. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :148302, 2011.
- [97] J.T. Gleeson, P. Palffy-Muhoray, and W. van Saarloos. Propagation of excitations induced by shear flow in nematic liquid crystals. *Phys. Rev. A*, 44 :2588, 1991.
- [98] G. Degré. *Etude microfluidique de phénomènes sous écoulement : rhéologie de fluides complexes et agrégation de particules paramagnétiques*. PhD thesis, Université Paris 6, 2007.



Les mécanismes de fracture dans les matériaux solides ont été activement étudiés. Dans les fluides complexes, les fractures ont déjà été observées et sont jusqu'à présent beaucoup moins bien documentées. Nous avons choisi d'analyser les phénomènes de fracturation dans une classe particulière de fluides complexes : les gels transitoires auto-assemblés. Ces gels, viscoélastiques, possèdent la propriété de s'écouler aux temps longs et de se comporter de manière élastique aux temps courts. Nous avons axé cette thèse autour de trois systèmes modèles : des microémulsions connectées, des solutions de micelles géantes, ainsi qu'un système « hybride » constitué de solutions de micelles de morphologie contrôlable et connectées. Tous ces systèmes, qui sont à l'équilibre thermodynamique, se comportent comme des fluides de Maxwell, néanmoins leurs microstructures sont très différentes. Les microémulsions connectées sont formées de gouttelettes d'huile, stabilisées par des tensioactifs, dispersées dans de l'eau et connectées par des polymères téléchéliques. Les solutions de micelles géantes sont des agrégats allongés et semi-flexibles, enchevêtrés, résultant de l'auto-assemblage de tensioactifs en solution dans l'eau. Enfin, le système de micelles pontées est constitué d'agrégats de tensioactifs dont on peut contrôler la morphologie (sphères -> cylindres -> vers) et qui sont pontés par un polymère téléchélique. Ces trois systèmes ont été étudiés dans une géométrie confinée : une cellule de Hele-Shaw radiale. Elle est constituée de deux plaques de verre séparées par des espaceurs de taille contrôlée (500  $\mu\text{m}$ ) et percée d'un trou en son centre permettant l'injection de fluides.

Nos expériences consistent en l'injection, à débit contrôlé, d'une huile faiblement visqueuse dans le gel. Le contraste de viscosité entre l'huile injectée et le gel étant important, l'interface huile/gel n'est pas stable. En fonction du débit d'injection d'huile, nous avons observé différents phénomènes. A bas débits d'injection, une instabilité visco-capillaire se développe : l'interface huile/gel se déforme et forme des motifs appelés doigts visqueux. Cette instabilité de Saffman-Taylor est bien connue pour des fluides visqueux. A plus haut débit en revanche, un autre type d'instabilité se développe, d'origine élasto-capillaire : les fractures.

Nous avons quantifié les différences entre les deux types d'instabilité. En utilisant des techniques complémentaires, visualisation directe à l'aide d'une caméra rapide et vélocimétrie par corrélation d'images, nous avons montré qu'il existe une discontinuité entre la vitesse de l'interface huile/gel et la vitesse du gel à la pointe de fracture. Cette discontinuité est inexistante dans le cas de la digitation. Nous avons montré que la structure du gel influe sur la transition entre ces deux types d'instabilité. En étudiant les champs de déplacement des microémulsions connectées, nous avons caractérisé les déplacements du gel autour de la pointe, notamment la manière dont l'amplitude des déplacements du gel décroît quand on s'éloigne de la pointe de fracture. Quand la structure du gel peut se réorganiser sous écoulement, nous avons mesuré un signal de biréfringence associé à ces réorganisations. En étudiant ce signal, qui apparaît à la pointe d'une fracture, nous avons pu réaliser une première mesure macroscopique de la taille d'une « zone de process ». Nous avons montré que cette zone est d'autant plus grande que la vitesse de la fracture est petite.

Lors d'expériences consistant à injecter des solutions de micelles géantes dans elles-mêmes, nous avons découvert l'existence d'une instabilité d'écoulement inconnue jusqu'à aujourd'hui. Elle se caractérise par la perte transitoire de la symétrie radiale de l'écoulement et l'apparition de « branches » biréfringentes se propageant à de très hautes vitesses dans le gel et qui, au final, déforment l'interface air/gel.

Mots clés : Fracture ; Fluides complexes ; Réseaux transitoires ; Digitation visqueuse, Instabilités viscoélastiques ; Ductilité ; Fragilité.

Fracture mechanisms in solid materials have been extensively studied. Although cracks are also commonly seen in soft solids, the fracture process is still not very well understood for these materials. In this thesis we choose to study fracture on a particular class of materials : complex fluids. We will focus on one particular family of complex fluids which are self-assembled transient gels. These viscoelastic gels have the property to flow at long timescale while behaving as an elastic solid at short timescales. We have investigated three model systems : a bridged micro emulsion and an entangled solution of wormlike micelle, and a "hybrid" system made of bridged micelles of tunable morphology. These systems are at thermodynamic equilibrium and behave as Maxwell fluids but they differ in microscopic structures. Bridged micro emulsions are made of surfactant-stabilized oil droplet dispersed in water and bridged by telechelic polymers. Wormlike micelles are long semi flexible aggregates made from the self-assembly of surfactant in a water solution. Lastly, bridged micelles are made of surfactant aggregates of controllable shape (sphere -> cylinder -> worm) in water bridged by telechelic polymers. We choose to study these different systems in a confined geometry : a radial Hele-Shaw cell. The Hele-Shaw cell is made of two glass plates separated by spacers of controllable thickness. A hole is pierced in the center of the cell for injecting the fluids.

The experiments consist in the injection at a controlled rate of low viscosity oil inside the highly viscous gel. Because of the high viscosity contrast between the two fluids, the oil/gel interface is unstable. Depending of the injection rate, we observed different instabilities. At lowest rates, an instability of visco-capillary origins appears and the oil/gel interface is deformed leading to a viscous fingering pattern. This instability called Saffman Taylor instability is widely known and has been extensively studied for Newtonian fluids. At highest rates another instability patterns arise of elasto capillary origin where the patterns are vastly different from the previous one and are made of cracks propagating through the gel. We have quantified the difference between the two types of instability.

By combining direct visualization using high speed imaging and digital image correlation techniques we have characterized the displacement field of the gel around the crack tip, and in particular how its amplitude decays away from the tip. For bridged microemulsion, we have also evidenced the existence of a velocity discontinuity between the crack velocity and the velocity of the gel near the crack tip whereas no discontinuity occurs in the case of viscous fingering. Using bridged micelles of tunable morphologies we have also shown that the transition between the two instabilities is controlled by the viscoelasticity of the gel. Finally, for gel that can reorient under flow we have measured a birefringence signal associated to these reorganization. By studying this signal at the crack tip we were able to perform a measurement of the size of the "process zone" which could be considered as the first macroscopic quantitative analysis of the ductility of a crack in complex fluids. During complementary experiments which consist of the injection of wormlike micelles in themselves we have reported a new kind of flow instability. This instability is characterized by the transient loss of the radial symmetry during flow and by the apparitions of typical "branches" which propagates at very high speed through the sample and finally distort the air/gel interface.

Keywords : Fracture ; Complex fluids ; Transient networks ; Viscous fingering ; Viscoelastic instabilities ; Ductility ; Brittleness.